



Morphogenèse et auto-organisation : tiges, plaques, films et gouttes

Arezki Boudaoud

► To cite this version:

Arezki Boudaoud. Morphogenèse et auto-organisation : tiges, plaques, films et gouttes. Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2006. tel-00110763

HAL Id: tel-00110763

<https://theses.hal.science/tel-00110763>

Submitted on 31 Oct 2006

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Université Pierre et Marie Curie

Laboratoire de Physique Statistique

Département de Physique
de l'Ecole Normale Supérieure



**Morphogenèse et auto-organisation :
tiges, plaques, films et gouttes**

Thèse d'Habilitation à diriger des recherches
de l'Université Pierre et Marie Curie

présentée par
Arezki Boudaoud

Soutenance le 30 octobre 2006 devant le jury composé de :

Martine Ben Amar	Invitée
Yves Couder	Invité
Christophe Coupeau	Examineur
Jean-François Joanny	Examineur
Laurent Limat	Rapporteur
Lev Truskinovsky	Examineur
Emmanuel Villermaux	Rapporteur
Thomas A. Witten	Rapporteur

Remerciements

Ce mémoire est une synthèse de mes travaux afin d'obtenir l'Habilitation à diriger des recherches de l'université Pierre et Marie Curie. Evidemment, ce rite d'initiation requiert des rapporteurs et un jury. Laurent Limat, Emmanuel Villermaux et Tom Witten ont gentiment accepté la lourde tâche de relecture ; Martine Ben Amar, Yves Couder, Christophe Coupeau, Jean-François Joanny et Lev Truskinovsky m'ont fait l'honneur de compléter le jury ; je les en remercie tous vivement.

Je tiens à remercier tout particulièrement Yves Pomeau. Même si je n'ai jamais collaboré avec lui, j'ai apprécié nos discussions, et, surtout, son enseignement de « Physique macroscopique » me guérit de mes hésitations entre les mathématiques et la physique. Je remercie Martine Ben Amar et Yves Couder qui me confortèrent dans ce choix et m'y guidèrent.

Après le Doctorat, mon séjour au département de mathématiques du MIT fut très instructif et me donna accès à une extraordinaire bibliothèque à laquelle sont redevables mes contributions orientées vers la biologie. Je remercie Ruben Rosales et John Bush de m'y avoir accueilli.

Evidemment encore, l'activité d'un chercheur requiert un cadre pour s'épanouir. Les directeurs successifs du Laboratoire, Jacques Meunier et Eric Perez, les secrétaires, Marie-Christine Gefflot, Annie Ribaudeau et tout particulièrement Nora Sadaoui, l'atelier, José da Silva Quintas et Olivier Hombert, Laurent Quartier, l'équipe informatique du Département et en particulier Zaïre Dissi, m'ont tous accompagné. Je les en remercie chaleureusement. Le Laboratoire de Physique Statistique est composite, ce qui est à la fois sa faiblesse et sa force : la variété des sujets qui y sont traités et les discussions scientifiques qu'on peut y avoir sont stimulantes et enrichissantes.

Je remercie toutes les personnes dont les suggestions et les conseils m'ont aidé ; je ne les énumérerai pas de crainte d'en oublier et je les prie de m'en excuser. Les personnes avec lesquelles j'ai collaboré ou je commence à collaborer – Mokhtar Adda-Bedia, Bruno Andreotti, Basile Audoly, Renaud Bastien, Martine Ben Amar, Daniel Bonn, Laurent Boué, José Bico, John Bush, Davide Cassani, Frédéric Caupin, Anne-Marie Cazabat, Sahraoui Chaïeb, Francis Corson, Yves Couder, Stéphanie Deboeuf, Julie Deshayes, Marie-Josèphe Deshayes, Antonin Eddi, Emmanuel Fort, Charles-Henri Gautier, Geoffroy Guéna, Eugenio Hamm, Eytan Katzav, Francisco Melo, Thierry Mora, Loïc Moulin, Pedro Patrício da Silva, Christophe Poulard, Suzie Protière, Charlotte Py, Salima Rafaï, Benoît Roman, Sergio Rica, Eran Sharon, Lionel Schouweiler, Eric Sultan et Miguel Trejo – ont directement contribué à mener ces travaux à bout ou à lancer de nouveaux projets. Je les remercie vivement, avec une mention particulière pour Mokhtar Adda-Bedia, avec qui nous entamons de nouvelles aventures scientifiques.

Avant-propos

Ce mémoire présente une synthèse de mes travaux de recherche depuis la thèse de Doctorat qui portait sur la stabilité et les vibrations des films de savon et les singularités des plaques élastiques. Depuis, j'ai continué à travailler sur les plaques élastiques en m'intéressant à de nouvelles problématiques – le compactage et le flambage. Je me suis posé des questions inspirées par les systèmes vivants, sur la croissance en particulier. Enfin, j'ai abordé le mouillage et la dynamique de gouttes et de films liquides.

J'ai procédé par glissements thématiques successifs. Toutefois, plusieurs préoccupations sont demeurées centrales dans mes travaux : la morphogenèse, les instabilités, les singularités, la sélection des échelles caractéristiques dans les systèmes physiques et la relations entre physique à petite et à grande échelle. Pourquoi une feuille de plastique déchirée a-t-elle un bord fractal ? Quelles sont les distributions de tailles dans une feuille de papier froissée ou dans une chevelure mouillée ? Comment les singularités – la divergence de la courbure près d'un point conique dans une feuille comprimée ou la divergence de la dissipation visqueuse près d'une ligne de contact mobile – sont elles régularisées à petite échelle ?

Dans ce mémoire, le lecteur trouvera des éléments de réponse à ces questions et à d'autres semblables. Le premier chapitre introduit les singularités d'une plaque élastique fortement contrainte et présente nos études sur le cœur des points coniques et sur le compactage de tiges et de feuilles élastiques. Le deuxième chapitre s'attaque au flambage d'objets élastiques dans diverses géométries, en relation avec la croissance dans le vivant. Le troisième chapitre introduit la théorie du mouillage dynamique et explique nos résultats sur des fluides non-newtoniens ou volatils et sur des substrats hétérogènes. Le quatrième chapitre présente deux types d'auto-organisation où interviennent la coalescence et la non-coalescence.

Des pistes pour nos recherches à venir figurent dans le chapitre de clôture. Une grande partie de ces projets est portée par la création d'une nouvelle équipe avec Mokhtar Adda-Bedia. Nous commençons à développer une activité expérimentale et théorique centrée sur la morphogenèse dans les systèmes mécaniques : interactions adhésion / fracture / écoulement / élasticité ; compaction ; et dynamique d'objets flexibles.

Table des matières

Curriculum vitae	9
1 Compactage et singularités	17
1.1 Introduction aux tiges et aux plaques	17
1.1.1 Flexion et traction	17
1.1.2 Singularités	18
1.2 Mesure de l'énergie du cœur d'un d-cône	19
1.3 Physique statistique d'une tige confinée	21
1.4 Statistiques d'une feuille froissée	23
1.5 Compactage quasi-bidimensionnel	25
2 Croissance et flambage	29
2.1 Taille d'une cellule à paroi	29
2.2 Les gels comme système modèle	31
2.2.1 Dégonflement d'un cylindre	31
2.2.2 Gonflement d'une bande	32
2.2.3 Gonflement sur un substrat	34
2.3 Plastique déchiré et feuilles de plante	36
2.4 Film mince sur substrat élastique	38
3 Mouillage dynamique	41
3.1 Introduction à la théorie du mouillage dynamique	41
3.2 Liquides non-newtoniens	43
3.3 Liquides en évaporation	45
3.4 Instabilités lors de l'évaporation	47
3.5 Rugosité d'une ligne de contact mobile	50
4 Auto-organisation	53
4.1 Gouttes rebondissantes	53
4.2 Auto-assemblage capillaire de tiges	56
5 Après-propos	61
5.1 Conclusions	61
5.2 Projets	62
Bibliographie	65
Sélection d'articles	68

Curriculum vitae

Arezki Boudaoud, chargé de recherche
Laboratoire de Physique Statistique de l'Ecole Normale Supérieure
UMR 8550 du CNRS / Université Pierre et Marie Curie / Université Denis Diderot
24, rue Lhomond 75231 Paris Cédex 05
Tél. : 01 44 32 34 46 Fax : 01 44 32 34 33 boudaoud@lps.ens.fr

Formation

1994–1999 Elève à l'ENS.
1996 Agrégation de Sciences Physiques option Physique.
1997 DEA de Physique des Liquides, Université Pierre et Marie Curie.
2001 Doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie : *Membranes fluides et élastiques. Instabilités, singularités et auto-adaptation*. Recherche effectuée au LPS sous la direction de Martine Ben Amar et Yves Couder.

Parcours professionnel

1999–2001 Moniteur à l'Université Pierre et Marie Curie.
2001–2002 Instructor in Applied Mathematics, Department of Mathematics, MIT.
2001— Chargé de recherche au LPS.

Echanges internationaux

2000–2001 Séjours au Centro de Física Teórica e Computacional da Universidade de Lisboa (2+1 semaines).
2000 Séjour au Department of Mechanical Engineering, MIT (4 mois).
2000 Séjour au Department of Theoretical and Applied Mechanics, University of Illinois at Urbana-Champaign (3 semaines).
2001–2002 Séjours au Department of Mathematics, MIT (9 mois).
2004 Invitation de J.W.M. Bush (MIT) au LPS (1 mois).
2004–2006 Séjours au Departamento de Física, Universidad de Santiago, Chile (3x3 semaines).

Enseignement, formation et diffusion de la science

Enseignement

1999–2001 Travaux dirigés de Physique en PCEM, Université Pierre et Marie Curie — 140 heures.

2001–2002 Travaux dirigés de Mathématiques appliquées — niveau L2/L3, 80 heures — et cours de Méthodes mathématiques pour l'ingénieur — niveau M1/M2, 40 heures — au MIT, Cambridge, USA.

2003–2004 Tutorat de Mécanique (2^e année) à l'ESPCI — 12 heures.

1999–2007 Cours et travaux dirigés de Physique Non-Linéaire, DEA de Physique des Liquides (1999–2000), DEA Modélisation dynamique et statistique des Systèmes Complexes (2002–2004), M2 Systèmes dynamiques et statistiques de la matière complexe (2004–2006 et 2006–2007) — 100 heures.

Cours de recherche

Ecole de Mécanique Physique, Porquerolles, 24 septembre – 4 octobre 2006, *Elasticité des plaques*.

Encadrement de chercheurs post-doctoraux

Eytan Katzav, boursier Marie-Curie 2005–2006 (30%, avec M. Adda-Bedia).

Stéphanie Deboeuf, 2006–2007 dans le cadre du projet européen MechPlant (60%, avec M. Adda-Bedia).

Encadrement de thèses

Eric Sultan 2002–2005 (80%, avec M. Ben Amar) : *Instabilités et singularités : des films minces aux plaques élastiques*.

Laurent Boué 2005–2008 (70%, avec M. Adda-Bedia) : *Formation de structures induites par des contraintes mécaniques et géométriques : Des systèmes physiques aux systèmes biologiques*.

Francis Corson 2005–2008 (30%, avec M. Adda-Bedia) : *Croissance et morphogenèse : des solides cellulaires à la vénéation des feuilles de plante*.

Encadrement de stages

Stage de Magistère de Mourad Haddad (juillet 1999).

Stage de DEA d'Etienne Larsabal (juillet 2000).

Stages de Magistère (juillet 2001) et de M2 (février–mars 2004) de Thierry Mora.

Stages de M2 de Davide Cassani (février–mars 2005) et de Laurent Boué (mai 2005), co-encadrés avec M. Adda-Bedia.

Stage de Licence (juillet 2005) d'Antonin Eddi, co-encadré avec M. Adda-Bedia.

Exposés de vulgarisation

Journées Polytechnique - Ecole Normale Supérieure – Union des Professeurs de Spéciales Physique, 14 mai 2003, La croissance des feuilles des plantes.

Séminaire du Magistère Interuniversitaire de Physique, 16 mars 2004, Papier froissé, feuilles de salade et cortex cérébral.

Articles de vulgarisation

1. A. Boudaoud, L. Heinrich et L. Poisson. Chimie amusante : le Défi Expérimental. *L'Actualité Chimique* (Journal de la Société Française de Chimie), numéro 8-9 (1999).
2. A. Boudaoud. De la corde au film de savon : l'auto-adaptation dans les systèmes vibrants. *Images de la Physique* (2002).
3. B. Audoly et A. Boudaoud, Fractales dans les feuillages et dans le plastique déchiré. *Bulletin de la Société Française de Physique*, numéro 141 (2003).
4. B. Audoly, A. Boudaoud, B. Roman et Eran Sharon. The self-similar rippling of leaf edges and torn plastic sheets. *Europhysics News*, volume 35, numéro 5 (2004).
5. J. Bico, B. Roman, A. Boudaoud et L. Moulin. La physique des poils mouillés. *Pour la Science*, numéro 329 page 18 (2005).

Dans la presse

1. *The geometry of a fender-bender*. Math in the Media (American mathematical society) : www.ams.org/new-in-math/11-2000-media.html (2000).
2. *No-Frills Explanation for Fancy Foliage ?* ScienceNow (*Science* en ligne) : sciencenow.sciencemag.org/cgi/content/full/2003/311/3 (2003).
3. *Feuille de plante et feuille de plastique déchirée : pourquoi des formes fractales ?* Brèves du département Sciences physiques et mathématiques du CNRS : www.spm.cnrs-dir.fr/presse/breves.htm (2003).
4. *Quand les sacs plastiques copient les plantes*. Journal du CNRS (septembre 2004).
5. *Comment se forment les paquets de poils mouillés ?* Communiqué de presse du CNRS : www2.cnrs.fr/presse/communiqué/598.htm (2004).
6. *Comment se forment les paquets de poils mouillés ?* Journal du CNRS (janvier 2005).
7. *Des chercheurs au poil*. Sciences et Avenir (février 2005).
8. Interview de José Bico sur France Info (17 février 2005).
9. *Des gouttes qui marchent sur l'eau*. Communiqué de presse du CNRS : www2.cnrs.fr/presse/communiqué/738.htm (2005).
10. *L'inattendue lévitation de la goutte d'huile*, Le Monde (14 septembre 2005).

Transfert technologique et relations industrielles

Contrat avec Saint-Gobain Recherche (CNRS / Paris VI / ENS / SGR — 2006).
Collaboration CNRS / Télécrâne innovations (TCI) sur la modélisation de la croissance du crâne (2006–2007).

Animation de la recherche

Projets de recherche

Participant à l'ACI Jeunes Chercheurs *Structures élastiques minces : géométrie, rigidité, instabilités* 2004–2006.

Participant au projet européen (New Emerging Science and Technology) MechPlant *The role of mechanical instabilities in leaf development* 2005–2008.

Participant à l'ANR blanche *Ondes, particules et défauts topologiques* 2006–2009.

Organisation de conférences

Journées du LPS, 15–17 septembre 2004 (avec M. Adda-Bedia).

Comité scientifique de l'Ecole de Mécanique Physique, Porquerolles, 24 septembre – 4 octobre 2006.

Autres activités d'intérêt collectif

Co-responsable de la biophysique au sein du GDR Champ de Phase 2005–2008.

Membre nommé de la Commission de Spécialistes 29/30/31^e section de Bordeaux I et de la 60^e section de Paris VI 2004–2007.

Organisation du séminaire du LPS 2001—.

Coordination du Rapport d'activité du LPS 2001–2004.

Rapporteur pour European Physical Journal B, Europhysics Letters, Journal of Fluid Mechanics, Journal of Statistical Physics, Physical Review E, Physical Review Letters.

Production scientifique

Articles dans des revues à comité de lecture

1. A. Boudaoud, Y. Couder & M. Ben Amar. A self-adaptative oscillator. *Eur. Phys. J. B* **9**, 159-165 (1999).
2. A. Boudaoud, Y. Couder & M. Ben Amar. Self-adaptation in vibrating soap films. *Phys. Rev. Lett* **82**, 3847-3850 (1999).
3. A. Boudaoud, P. Patrício & M. Ben Amar. The helicoid versus the catenoid : Geometrically induced bifurcations. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 3836-3839 (1999).
4. A. Boudaoud, P. Patrício, Y. Couder & M. Ben Amar. Dynamics of singularities in a constrained elastic plate. *Nature* **407**, 718-720 (2000).
5. A. Boudaoud & S. Chaïeb. Singular thin viscous sheet. *Phys. Rev. E* **64**, 050601 (2001).
6. T. Mora & A. Boudaoud. Thin elastic plates : On the core of developable cones. *Europhys. Lett.* **59**, 41-47 (2002).
7. B. Audoly & A. Boudaoud. 'Ruban à godets' : an elastic model for ripples in plant leaves. *Comptes Rendus Mécanique* **330**, 831-836 (2002).
8. A. Boudaoud. Growth of walled cells : From shells to vesicles. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 018104 (2003).
9. B. Audoly & A. Boudaoud. Self-similar structures near boundaries. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 096105 (2003).
10. A. Boudaoud & S. Chaïeb. Mechanical phase diagram of shrinking cylindrical gels. *Phys. Rev. E* **68**, 021801 (2003).
11. S. Rafai, D. Bonn & A. Boudaoud. Spreading of non-Newtonian fluids on hydrophilic surfaces. *J. Fluid Mech.* **513**, 77-85 (2004).
12. E. Sultan, A. Boudaoud & M. Ben Amar. Diffusion-limited evaporation of thin polar liquid films. *J. Eng. Math* **50**, 209–222 (2004).
13. J. Bico, B. Roman, L. Moulin & A. Boudaoud, Elastocapillary coalescence in wet hair. *Nature* **432**, 690 (2004).
14. Y. Couder, E. Fort, C.-H. Gautier & A. Boudaoud. From bouncing to floating : noncoalescence of drops on a fluid bath. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 177801 (2005).
15. C. Poulard, G. Guéna, A.-M. Cazabat, A. Boudaoud & M. Ben Amar. Rescaling

the dynamics of evaporating drops. *Langmuir* **21**, 8226-8233 (2005).

16. Y. Couder, S. Protière, E. Fort & A. Boudaoud. Walking and orbiting droplets. *Nature* **437**, 208 (2005).

17. E. Sultan, A. Boudaoud & M. Ben Amar. Evaporation of a thin film : Diffusion of the vapour and Marangoni instabilities. *J. Fluid Mech.* **543**, 183-202 (2005).

18. S. Protière, Y. Couder, E. Fort & A. Boudaoud. The self-organisation of surface waves sources. *J. Phys. Cond. Mat* **17**, S3529-S3535 (2005).

19. E. Sultan & A. Boudaoud. Statistics of crumpled paper. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 136103 (2006).

20. S. Protière, A. Boudaoud & Y. Couder. Particle-wave association on a fluid interface. *J. Fluid. Mech.* **554**, 85-108 (2006).

21. T. Mora & A. Boudaoud. Buckling of swelling gels. *Eur. Phys. J. E* **20**, 119-124 (2006).

22. L. Schouweiler & A. Boudaoud. The rolling-up of sheets in a steady flow. *J. Fluid. Mech.* **563**, 71-80 (2006).

23. L. Boué, M. Adda-Bedia, A. Boudaoud, D. Cassani, Y. Couder, Spirals in the packing of flexible structures. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 166104 (2006).

24. E. Katzav, M. Adda-Bedia & A. Boudaoud. A statistical approach to close packing of elastic rods and to DNA packaging in viral capsids. *Proc. Nat. Acad. Sc. USA*. Sous presse (2006).

Articles soumis

25. A. Boudaoud. Non-newtonian thin films with normal stress : dynamics and spreading. Soumis à *Eur. Phys. J. E* (2006).

26. C. Py, R. Bastien, J. Bico, B. Roman & A. Boudaoud. 3D aggregation of wet fibers. Soumis à *Europhys. Lett.* (2006).

Conférences invitées dans des congrès

March Meeting of the American Physical Society, Austin, 6 mars 2003, On the growth of walled cells : from shells to vesicles.

Actes de colloques à comité de lecture

1. A. Boudaoud, Y. Couder & M. Ben Amar. On self-adaptative vibrating systems : From the beaded string to the soap film. Euromech Colloquium, Vibro-Acoustics and Flow-Structure Interactions. Publications du Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique 151 (juin1999). Éditeur P.-O. Mattéi.

2. A. Boudaoud, Y. Couder & M. Ben Amar. Sur les systèmes vibrants auto-adaptatifs. De la corde chargée au film de savon. Rencontre du Non-Linéaire IHP Paris 1999, Paris Onze édition. Éditeurs Y. Pomeau et R. Ribotta.

3. A. Boudaoud, P. Patrício, Y. Couder & M. Ben Amar. Dynamique des singularités dans les déformations d'une plaque élastique fortement contrainte. Rencontre du Non-Linéaire IHP Paris 2000, Paris Onze édition. Éditeurs Y. Pomeau et R. Ribotta.

4. A. Boudaoud & S. Chaïeb. Singularités coniques dans les nappes visqueuses. Rencontre du Non-Linéaire IHP Paris 2001, Paris Onze édition. Éditeurs Y. Pomeau et R. Ribotta.

5. A. Audoly & A. Boudaoud, Fronces auto-similaires au bord des feuilles distendues, 16^e Congrès Français de Mécanique, 2003.

6. E. Sultan & A. Boudaoud. Rencontre du Non-Linéaire IHP Paris 2003, Paris Onze

- édition. Papier froissé : approche unidimensionnelle. Éditeurs Y. Pomeau et R. Ribotta.
7. E. Sultan, A. Boudaoud & M. Ben Amar. Evaporation d'un film mince : Instabilités de Marangoni induites par l'évaporation limitée par la diffusion. Rencontre du Non-Linéaire IHP Paris 2004, Paris Onze édition. Éditeurs Y. Pomeau et R. Ribotta.
 8. J. Bico, B. Roman, L. Moulin & A. Boudaoud. Poils Mouillés : un mécanisme de coalescence élastocapillaire. Rencontre du Non-Linéaire IHP Paris 2005, Paris Onze édition. Éditeurs J.-R. Chazottes, A. Joets, C. Letellier et R. Ribotta.
 9. L. Boué, M. Adda-Bedia & A. Boudaoud. Confinement isotrope d'une feuille élastique en géométrie cylindrique. Rencontre du Non-Linéaire IHP Paris 2006, Non Linéaire Publications. Éditeurs M. Lefranc, C. Letellier et L. Pastur.

Communications à des congrès, symposiums

1. Journées mathématiques/physique, ENS, 13 septembre 1995, Equation de Navier-Stokes et turbulence faible.
2. Cargese Summer School, Elasticity and Viscoelasticity : Nonlinear instabilities in Fluids and Solids, Cargèse, 2 juillet 1997, Phase coupling in multi-layered thermal convection.
3. Journées du Non-Linéaire, Paris, 15 janvier 1998, Sur les systèmes vibrants auto-accordés.
4. Journées de Physique Statistique, Paris, 29 janvier 1998, Sur les systèmes vibrants auto-accordés.
5. Conference on Flow, Friction and Fracture, Beyrouth, 2 juillet 1998, Self-adaptive dynamical systems.
6. Journées de Physique Statistique, Paris, 28 janvier 1999, Sur les surfaces minimales. Bifurcation de l'hélicoïde.
7. Journées du Non-Linéaire, Paris, 19 mars 1999, Sur les systèmes vibrants auto-adaptatifs. L'exemple des films de savon.
8. Euromech Colloquium. Vibro-Acoustics and Flow-Structure Interactions, Cargèse, 23 avril 1999, On self-adaptative vibrating systems : From the beaded string to the soap film.
9. Journées de Physique Statistique, Paris, 27 janvier 2000, Papier froissé. Un mécanisme de cascade vers les petites échelles.
10. Journées du Non-Linéaire, Paris, mars 2000, Dynamique des singularités d'une plaque élastique fortement contrainte.
11. Septièmes Journées de Matière Condensée, Poitiers, 30 août 2000, Surfaces minimales : bifurcations induites par la géométrie.
12. Journées de Physique Statistique, Paris, 25 janvier 2001, Instabilités dans les gels en rétraction.
13. Journées du Non-Linéaire, Paris, 15 mars 2001, Singularités coniques dans les nappes visqueuses.
14. Annual Meeting of the American Physical Society Division of Fluid Dynamics, San Diego, 19 novembre 2001, Conical viscous sheets.
15. March Meeting of the American Physical Society, Indianapolis, 20 mars 2002, On cells and size.
16. March Meeting of the American Physical Society, Indianapolis, 20 mars 2002, Thin elastic plates : the stability of ridges under compression.

17. Huitièmes Journées de Matière Condensée, Marseille, 28 août 2002, Vrillage d'un filament de liquide visqueux.
18. Journées de Physique Statistique, Paris, 24 janvier 2003, Quelle est la taille d'une cellule à paroi ?
19. March Meeting of the American Physical Society, Austin, 3 mars 2003, Self-adaptation in vibrating systems.
20. March Meeting of the American Physical Society, Austin, 5 mars 2003, 'Ruban à Godets' : an elastic model for ripples in plant leaves.
21. Ecole thématique de formation en biologie de Berder, 19 mars 2003, Approches mécaniques pour la morphogenèse. Cellules à paroi et feuilles des plantes.
22. Workshop on Dynamics, Growth and Singularities of Continuous Media, 10 juillet 2003, Elasticity and growth : from cells to plant leaves.
23. Journées de Physique Statistique, Paris, 27 janvier 2005, Aggrégation et fragmentation avec une taille maximale.
24. Journées du Non-Linéaire, Paris, 9 mars 2006, Le repliement de feuilles placées dans un écoulement.
25. MechPlant meeting, Paris, 11 juillet 2006, An introduction to symmetry breaking and pattern formation.

Séminaires

1. FAST, Orsay, 19 janvier 2000, Singularités dans les déformations des plaques élastiques.
2. Mathématiques appliquées, CIMS, New York University, 30 mars 2000, Singularities in the deformation of elastic plates.
3. Mathématiques appliquées, Department of Mathematics, MIT, 9 mai 2000, Singularities in the deformation of elastic plates.
4. Mécanique des fluides, Department of Mathematics, MIT, 26 mai 2000, The helicoid vs. the catenoid : Geometrically induced bifurcations.
5. Department of Theoretical and Applied Mechanics, University of Illinois at Urbana-Champaign, 22 juin 2000, Singularities in the deformation of elastic plates.
6. Laboratoire de Physique et Mécanique des Milieux Hétérogènes, Paris, 6 octobre 2000, Plaques élastiques et nappes visqueuses. Singularités et instabilités.
7. Physique statistique, Service de Physique Théorique, CEA-Saclay, 23 octobre 2000, Surfaces minimales, géométrie et transitions de phase.
8. Centro de Física da Matéria Condensada, Université de Lisbonne, 14 décembre 2000, Elastic plates and viscous sheets. Singularities and instabilities.
9. Laboratoire de Physique Statistique, Paris, 10 janvier 2001, Plaques élastiques et nappes visqueuses. Singularités et instabilités.
10. Laboratoire de Mécanique, université du Havre, 22 juin 2001, Plaques élastiques. Singularités et instabilités.
11. Institut de Recherche sur les Phénomènes Hors Équilibre, Marseille, 29 juin 2001, Plaques élastiques et nappes visqueuses. Singularités et instabilités.
12. Mathématiques appliquées, Department of Mathematics, MIT, 18 septembre 2001, Self-adaptation in vibrating systems.
13. Mécanique, Department of Engineering and Applied Sciences, Harvard University, 7 novembre 2001, Elastic plates and viscous sheets. Singularities and instabilities.

14. Centro de Física da Matéria Condensada, Université de Lisbonne, 10 janvier 2002, Patterns in shrinking gels.
15. Center for Interdisciplinary Research and Complex Sciences, Northeastern University, Boston, 23 avril 2002, Thin elastic sheets : from crumpling to cell growth.
16. Mécanique des Fluides, Laboratoire de Modélisation en Mécanique, 6 février 2003, Filaments, nappes et films.
17. Laboratoire de Physique et Mécanique des Milieux Hétérogènes, Paris, 23 mars 2003, Instabilités mécaniques et croissance en biologie.
18. Laboratoire de Physique Statistique, Paris, 21 mai 2003, Elasticité et croissance : quelle est la forme d'une feuille de salade ?
19. Physicochimie du vivant, Institut Curie, Paris, 4 décembre 2003, Approches mécaniques pour la morphogenèse, de la cellule à la feuille.
20. Service de Physique de l'Etat Condensé, CEA-Saclay, 28 janvier 2004, Papier froissé, cellules et feuilles de plantes.
21. Institut des Nanosciences de Paris (GPS-LOS-LMDH), 25 novembre 2004, Morphogenèse et auto-similarité : des feuilles de salade aux cheveux mouillés.
22. Département de Physique, Universidad de Chile, Santiago, 16 décembre 2004, Morphogenesis and self-similarity : from lettuce leaves to wet hair.
23. Institut de Recherche sur les Phénomènes Hors Équilibre, Marseille 14 janvier 2005, Structures auto-similaires : des feuilles de salade aux touffes de cheveux.
24. Laboratoire de Physique et Mécanique des Milieux Hétérogènes, Paris, 25 février 2005, Coalescence élastocapillaire. *Séminaire en duo avec José Bico.*
25. Centre de Recherche Paul Pascal, Bordeaux, 25 avril 2005, Evaporation, étalement, élasto-capillarité et auto-assemblage.
26. Complex Fluids and Biophysics Seminar, Instituut Lorentz, Universiteit Leiden, Pays Bas, 12 juin 2006, Coalescence and non-coalescence : from bouncing droplets to wet hair.
27. Département de Physique de l'ENS, 22 juin 2006, Voiliers et courses : physique et technique.

Chapitre 1

Compactage et singularités

« [...] au bout de quelques jours, des milliers de monstres, grouillant dans un noeud compact de matière, naquirent à la lumière. »

Isidore de Lautréamont, *Les chants de Maldoror*.

Quel est la forme d'un objet élastique fortement comprimé? Quel est le rôle des singularités de la forme? Comment expliquer l'apparition de petites échelles dans une feuille de papier froissé? Ces questions – et d'autres – ont suscité nombre de travaux depuis une dizaine d'années. Elles ont une portée physique plus générale, allant de pair avec celles de la turbulence, de l'atomisation ou de la fragmentation, par exemple (on pourra se référer à [27, 58]). Dans ce chapitre nous introduisons la physique des tiges et des plaques, ainsi que la focalisation de l'énergie autour de régions quasi-singulières : les plis et les d-cônes. Ensuite, nous expliquons comment nous avons pu mesurer l'énergie du coeur d'un d-cône. Enfin, nous présentons nos différentes approches pour les propriétés topologiques, géométriques et mécaniques d'un objet élastique mince confiné dans un petit volume.

1.1 Introduction aux tiges et aux plaques

Les objets élastiques minces ont des propriétés remarquables : même si leur matériau est élastiquement linéaire (les contraintes sont proportionnelles aux déformations), la géométrie leur donne un comportement global non linéaire qui peut se manifester par des instabilités ou par la focalisation de l'énergie. Pour des revues, on pourra consulter [1, 60].

1.1.1 Flexion et traction

Une tige – objet dont les dimensions de la section sont petites devant la longueur – placée dans un plan¹ a une densité d'énergie élastique quadratique en sa courbure c , son énergie totale s'écrivant simplement comme une intégrale sur l'abscisse curviligne s

$$\mathcal{E} = \frac{1}{2}B \int c^2(s) \, ds. \quad (1.1)$$

¹On se place dans le cas générique où déformations de torsion et de traction sont absentes.

Cette énergie correspond au coût pour fléchir la tige. La rigidité de flexion B est proportionnelle au module d'Young E du matériau et au carré de l'aire d'une section ; le coefficient de proportionnalité fait intervenir le coefficient de Poisson ν du matériau et dépend de la forme de la section [35]. Le phénomène non-linéaire le plus simple s'observe lorsque l'on rapproche les deux extrémités d'une tige : au delà d'une force critique, elle perd sa forme rectiligne – elle flambe. Des aspects plus complexes du flambage sont abordés dans le chapitre suivant.

La physique d'une plaque – objet dont l'épaisseur h est petite devant les autres dimensions d'ordre L et dont l'état d'équilibre est plan – est plus riche ; elle a deux modes de déformation : la flexion – la surface associée est courbée – et la traction – les longueurs sur la surface associée sont changées. Cette surface possède deux courbures principales c_1 et c_2 , auxquelles sont associées deux invariants : la courbure moyenne $M = c_1 + c_2$ et la courbure de Gauss $G = c_1 c_2$. L'énergie élastique peut s'écrire formellement comme une fonctionnelle quadratique de ces deux invariants ² :

$$\mathcal{E} = \int \int \left(\frac{1}{2} B M^2 + \frac{Eh}{8} (\Delta^{-1} G)^2 \right) dx dy. \quad (1.2)$$

x et y sont les coordonnées le long de la surface. $B = Eh^3/12/(1-\nu^2)$ représente la rigidité de flexion. Δ est l'opérateur de Laplace ; comme son inversion doit tenir compte des conditions aux limites, cette formulation compacte n'est pas la plus pratique. Le premier terme de l'énergie représente le coût de la flexion et le second celui de la traction. Pour un déplacement transverse d'ordre Z , l'énergie (totale) de flexion est d'ordre $Eh^3(Z/L^2)^2 L^2$ et celle de traction d'ordre $Eh(L^2 Z^2/L^4)^2 L^2$. Par conséquent, la traction est bien plus coûteuse que la flexion dès que le déplacement transverse Z est grand devant l'épaisseur h . Si l'on applique des contraintes à une plaque, le système préfère la flexion pure (sans traction) si cela est possible ; la courbure de Gauss est alors nulle, et la surface adopte une forme développable (isométrique au plan). Sinon, le système préfère focaliser la traction, et de pair la flexion, sur de petites régions. La surface reste presque développable, mais sa courbure devient grande au voisinage de singularités linéiques ou ponctuelles. Les régions où la traction est localisée deviennent infiniment étroites ou petites quand l'épaisseur de la plaque s'approche de zéro.

1.1.2 Singularités

Un pli correspond à une singularité linéique de la surface développable et raccorde deux parties lisses de la surface ; l'énergie élastique est focalisée au voisinage de la ligne de raccordement. S'il est courbé (Fig. 1.1a,b), la ligne centrale du pli est caractérisée par sa courbure $c(s)$ et la discontinuité de pente $2\phi(s)$ de l'intersection entre la surface et un plan normal à la ligne en l'abscisse curviligne s . L'énergie d'un pli courbe se met sous la forme [48]

$$\mathcal{E} = F_{pc} B (12(1 - \nu^2))^{1/4} h^{-1/2} \int \phi^{5/2}(s) c^{1/2}(s) ds. \quad (1.3)$$

²Cette formulation est valable pour des déformations modérées par rapport à l'état de référence plan [35].

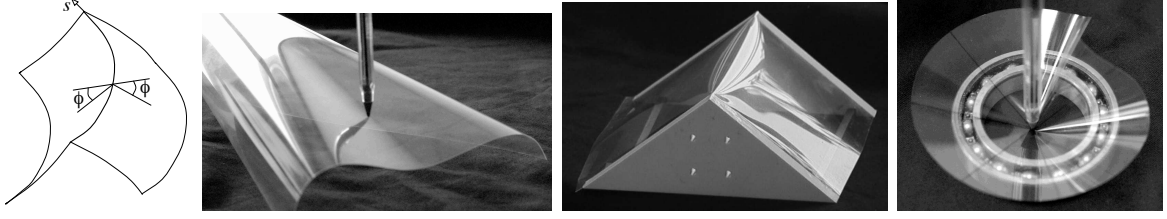


FIG. 1.1 – Schéma et photographies de singularités. **a** Schéma d'un pli courbe et définition de l'angle ϕ **b** Pli courbe – raccordement entre deux parties cylindriques ; **c** pli rectiligne – raccordement entre deux parties planes ; **d** d-cône – une feuille enfoncée dans un trou circulaire.

Le préfacteur numérique vaut $F_{\text{pc}} = 1,2$. Pour un pli rectiligne (Fig. 1.1c) de longueur W qui raccorde deux régions planes, ϕ est constant. L'énergie se met sous la forme [40]

$$\mathcal{E} = F_{\text{pr}} B (12(1 - \nu^2))^{1/6} h^{-1/3} W^{1/3} \phi^{7/3}. \quad (1.4)$$

Le préfacteur numérique vaut $F_{\text{pr}} = 1,5$ [1]. Enfin un d-cône (pour cône développable) correspond à une singularité ponctuelle de la surface développable qui a localement la forme d'un cône (Fig. 1.1d), le déplacement transverse se mettant en coordonnées polaires (r, θ) sous la forme $w(r, \theta) = r\phi g(\theta)$; ici g est une fonction d'ordre 1 afin que ϕ soit une mesure de l'amplitude du d-cône. La contrainte de développabilité s'écrit

$$\int (g(\theta) + g''(\theta))g(\theta) d\theta = 0. \quad (1.5)$$

L'énergie provient de la flexion de toute la région conique [3], ce qui fait apparaître une divergence logarithmique ayant pour coupures les tailles de la plaque R et du coeur du d-cône R_c ,

$$\mathcal{E} = \frac{1}{2} B \ln \frac{R}{R_c} \phi^2 \int (g(\theta) + g''(\theta))^2 d\theta. \quad (1.6)$$

Le paradoxe du d-cône est que l'énergie de la partie conique domine l'énergie du coeur, qui est d'ordre $B\phi^2$. D'ailleurs la sélection de la taille du coeur demeure mystérieuse [38] ; les arguments de [3, 13] conduisaient à $R_c \sim h\phi$, alors que ceux de [12] donnaient en accord avec les expériences $R_c \sim h^{1/3} R^{2/3} \phi^{-1/3}$. L'étude de la section suivante avait ces paradoxes comme motivations.

Remarquons que dans la limite de petite épaisseur $h/R \ll 1$, le coût énergétique croît en passant d'un d-cône à un pli puis à un pli courbe. Les surfaces développables avec le moins de singularités puis celles avec le moins de plis seront préférées énergétiquement.

1.2 Mesure de l'énergie du coeur d'un d-cône

Ces désaccords sur la physique du coeur d'un d-cône nous ont conduit à concevoir un dispositif expérimental pour mesurer l'énergie du coeur. Le principe est d'avoir un montage pour générer des d-cônes avec un forçage à distance (différent de celui de la figure 1.1d), de percer la plaque à un endroit où le coeur d'un d-cône sera localisé et de

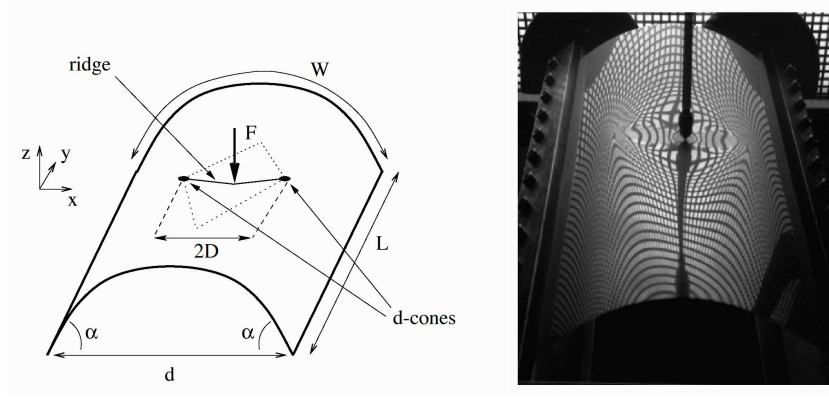


FIG. 1.2 – Mesure de l'énergie du coeur d'un d-cône. Schéma et photographie du montage. Des trous sont ensuite percés symétriquement de part et d'autre de l'indenteur.

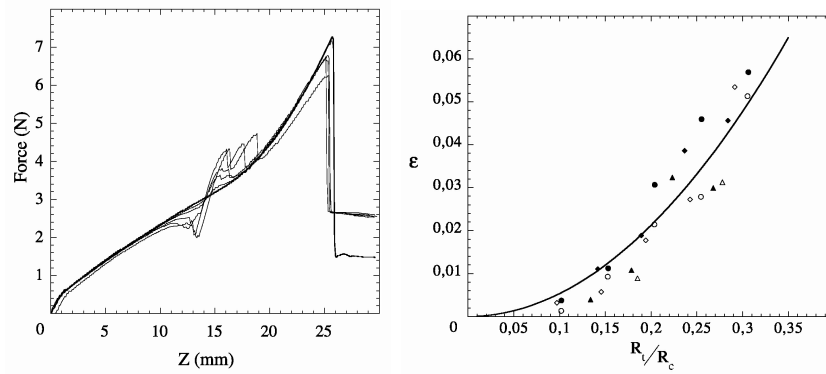


FIG. 1.3 – Mesure de l'énergie du coeur d'un d-cône. **a** Courbes de force avec des trous de taille différentes de 0 à $R_t = 6$ mm séparés de $2D_0 = 10$ cm (dans le cas $\phi = 30^\circ$ et $d = 21$ cm). **a** Energie adimensionnée ε en fonction du rapport entre rayon du trou R_t et rayon du coeur R_c .

mesurer la force appliquée pour maintenir le d-cône à une position donnée avec ou sans trou et de remonter par soustraction à l'énergie de la zone percée.

Pour préciser, décrivons l'expérience de référence [9]. Une plaque est fléchie avec une courbure $2k$ et encastree le long de deux bords (Fig. 1.2), puis un indenteur muni d'un capteur de force abaisse le centre de la plaque d'une hauteur Z , qui joue le rôle de paramètre de contrôle. Pour des hauteurs Z modérées, deux d-cônes sont générés symétriquement (Fig. 1.2) à une distance $D = \sqrt{Z/k}$ du centre, et ont pour intensité³

$$\phi = 2\sqrt{kZ}/\mu, \quad (1.7)$$

$\mu = 4,8$ étant un préfacteur numérique.

Dans notre cas, la plaque est percée de deux trous de diamètre R_t sur son l'axe de symétrie de la plaque qui passe par les bords encastres, à une distance D_0 de son centre. La

³ $\mu\phi$ est le plus grand angle entre deux génératrices opposées – cette définition est équivalente à celle de [9, 13].

mesure de différence de force $\Delta F(Z)$ (Fig. 1.3) donne directement la différence d'énergie $\Delta \mathcal{E}(Z)$ entre les deux situations, avec ou sans trous. Le maximum de la différence d'énergie $\Delta \mathcal{E}_m$ doit être atteint au moment où le trou est inclus dans le coeur du d-cône (de taille R_c). En supposant l'énergie répartie uniformément dans le coeur, alors

$$\Delta \mathcal{E}_m/2 = F_{cdc} B \phi^2 (R_t/R_c)^2 = 4 F_{cdc} B k^2 D_0^2 / \mu^2 (R_t/R_c)^2. \quad (1.8)$$

Le tracé du gain d'énergie sans dimension $\epsilon = \Delta \mathcal{E}_m \mu^2 / (8 \kappa G k^2 D_0^2)$ (Fig. 1.3) est en accord avec cette forme et donne $F_{cdc} = 35 \pm 3$. Nous aboutissons effectivement à une mesure de l'énergie du coeur $F_{cdc} B \phi^2$.

Nous retrouvons ici l'une des grandes difficultés pour comparer expériences, simulations numériques et théories asymptotiques : il faut des plaques de rapport d'aspect taille/épaisseur énorme – plus grand que, disons, 10^{15} – pour atteindre la limite asymptotique où le coeur a une énergie négligeable devant celle de la partie conique d'ordre $B \phi^2 \ln(R/R_c)$. En pratique, l'énergie du coeur est un peu plus petite que celle de la partie conique. Ceci remet partiellement en question les mesures de [9, 12] pour des plaques présentant essentiellement des d-cônes. Le lecteur intéressé pourra également se reporter à notre publication pour l'étude de l'effet de la plasticité des matériaux qui se fait d'abord sentir dans le coeur des d-cônes.

Référence : T. Mora & A. Boudaoud. Thin elastic plates : On the core of developable cones. *Europhys. Lett.* **59**, 41-47 (2002).

1.3 Physique statistique d'une tige confinée

Nous passons maintenant à la compréhension du compactage quand des configurations complexes sont atteintes. Pour commencer, considérons une tige confinée dans une sphère de petite taille. La tige reste au voisinage de la surface de la sphère pour minimiser sa courbure. La configuration la plus favorable énergétiquement est de s'enrouler le long d'un grand cercle, ce qui entraînerait l'interpénétration de parties de la tige. En fait, la contrainte physique d'auto-évitement induit une multiplicité d'états d'équilibre et un comportement ressemblant à celui d'un verre, ce qui est réminiscent des empilements de billes. Edwards [21] a développé un formalisme thermodynamique, où la température est remplacée par une variable appelée compactivité, pour décrire les empilements granulaires et les polymères refroidis à un état de verre ; il n'y a pas de fluctuations thermiques pour explorer l'espace des phases, mais une agitation mécanique peut le permettre.

Ici, nous empruntons ce formalisme et l'appliquons à une tige confinée sur une sphère de rayon ℓ . L'énergie libre adimensionnée Y se met sous la forme d'une intégrale de chemin sur les configurations possibles $\mathbf{R}(s)$

$$\begin{aligned} \exp(-Y) = & \int D[\mathbf{R}] \delta(\mathbf{R}^2 - \ell^2) \delta(\mathbf{R}'^2 - 1) \exp \left\{ -\frac{\varepsilon}{2} \int ds \mathbf{R}''^2 \right\} \\ & \exp \left\{ -\frac{u}{2} \int \int ds_1 ds_2 [\mathbf{R}'(s_1) \times \mathbf{R}'(s_2)]^2 \delta[\mathbf{R}(s_1) - \mathbf{R}(s_2)] \right\} \end{aligned} \quad (1.9)$$

Les fonctions δ imposent les contraintes de rester sur la sphère et d'inextensibilité. La première exponentielle contient l'énergie de flexion de la tige, quadratique en la courbure

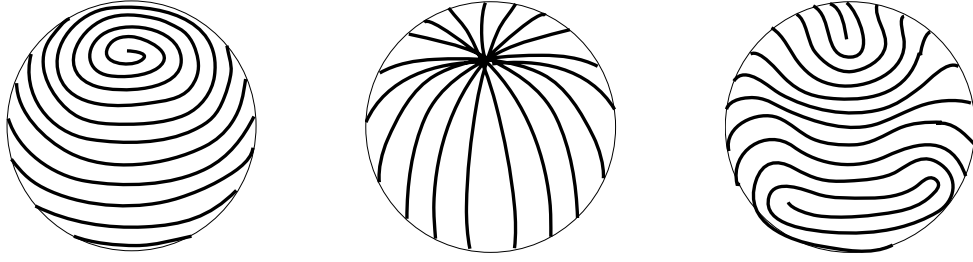


FIG. 1.4 – Schématisation des configurations possibles pour la phase ordonnée. **a** Bobine ; **b** rayée ; **c** balle de tennis.

$|\mathbf{R}''|$, ϵ étant une longueur de persistance (la rigidité de flexion réduite par la température effective). La seconde exponentielle contient la pénalisation des auto-intersections à un angle droit, u étant son intensité⁴ ; c'est une adaptation du volume exclu entre deux bâtonnets calculée par Onsager, $|\mathbf{R}'(s_1) \times \mathbf{R}'(s_2)|$. La forme $|\mathbf{R}'(s_1) \times \mathbf{R}'(s_2)|^2$ que nous utilisons a les mêmes propriétés – elle est positive et a les mêmes extrema – et permet le calcul explicite de l'intégrale de chemin. Pour simplifier la présentation, nous omettons la partie isotrope de l'énergie d'auto-évitement $\int \int ds_1 ds_2 \delta[\mathbf{R}(s_1) - \mathbf{R}(s_2)]$, ce qui revient à renormaliser ϵ et u . La principale limitation de la formulation est l'absence du vrillage de la tige, dont le traitement rendrait impossibles des calculs explicites.

Nous avons montré que le système transite d'un état désordonné isotrope à un état ordonné nématique quand on augmente le confinement. Ceci donne une justification aux études de compactage de l'ADN dans les capsides virales (références dans [52]), où des configurations ordonnées spécifiques sont choisies *a priori*. La transition entre ces deux états se produit pour $\ell = t$, où la longueur caractéristique t dépend seulement de la tige

$$t^2 = \frac{L\epsilon u}{8\pi}. \quad (1.10)$$

Le paramètre d'ordre de la transition est le tenseur $\sigma_{ij}(\mathbf{r}) = \int ds R'_i R'_j \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}(s))$ d'orientation, qui a pour valeurs propres

$$\sigma_{\pm} = \frac{L}{8\pi\ell^2} \left(1 \pm \sqrt{1 - \frac{\ell}{t}} \right), \quad (1.11)$$

dans l'état nématique. La pression exercée sur la sphère vaut

$$P_d = \frac{L}{4\pi\epsilon\ell^3} \left(\frac{\epsilon^2}{\ell^2} + \frac{t^2}{\ell^2} \right), \quad P_o = \frac{L}{4\pi\ell^3\epsilon} \left(\frac{\epsilon^2}{\ell^2} + \frac{t}{\ell} \right), \quad (1.12)$$

dans l'état désordonné et dans l'état ordonné, respectivement. La transition vers l'état ordonné permet d'abaisser l'énergie de la tige, ainsi que la pression qu'elle exerce sur le container.

Enfin, comme nous obtenons un ordre nématique sur la sphère, nous pouvons proposer les configurations simples de la figure 1.4 pour l'état ordonné. La configuration bobine a

⁴Notons que la fonction δ qui y figure est de dimension 2 car \mathbf{R} vit sur la sphère ; ainsi u est sans dimension.

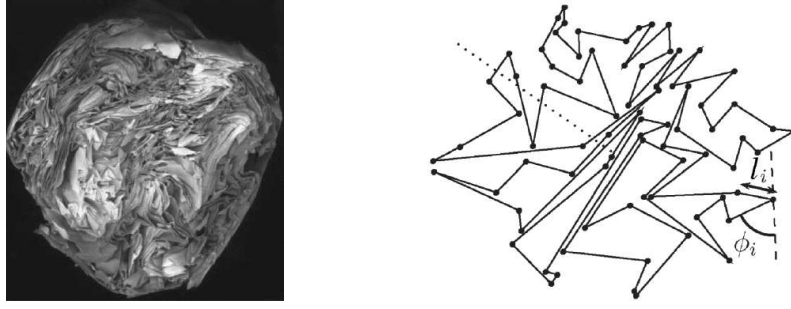


FIG. 1.5 – Papier froissé. **a** Coupe à travers une boulette (photo par Etienne Couturier); **b** Modèle numérique : une ligne brisée confinée.

deux disclinations $+1$ et correspond aux configurations présupposées et observées pour l'ADN dans les capsides virales; la configuration rayée a deux disclinations $+1$ mais semble défavorable à cause de la configuration des pôles; enfin la configuration balle de tennis a quatre disclinaisons $+1/2$ et pourrait être également observée. Nous nous attendons également à des configurations plus complexes, qui pourraient dépendre de l'histoire du système, tout comme dans les verres polymériques. Pour faire le lien avec la dernière section du chapitre, remarquons que dans les deux configurations vraisemblables – bobine et balle de tennis – la tige forme des spirales centrées sur les disclinaisons.

Référence : E. Katzav, M. Adda-Bedia & A. Boudaoud. A statistical approach to close packing of elastic rods and to DNA packaging in viral capsids. *Proc. Nat. Acad. Sc. USA*. Sous presse (2006).

1.4 Statistiques d'une feuille froissée

Lorsque l'on déplie une boulette de papier froissé, on observe qu'il y a une large distribution de tailles de plis. Quelle est cette distribution? Comment de petites échelles sont-elles générées? Des arguments théoriques [60] et les expériences [5] suggèrent une loi log-normale pour la distribution de tailles. Pour approfondir cette question, nous avons construit un modèle minimal pour une feuille de papier froissé, contenant les ingrédients physiques essentiels et rapide à simuler pour obtenir de bonnes statistiques.

Le modèle est inspirée par une coupe à travers une feuille de papier froissé (Fig. 1.5a). Il s'agit d'une ligne brisée auto-évitante de longueur 1 placée dans un potentiel de confinement. L'emplacement des N plis n'est pas imposé *a priori* mais est un produit de la minimisation de l'énergie. Pour garder les propriétés des plaques, l'énergie des plis prend la forme 1.4. Le potentiel de confinement est quadratique pour accélérer la minimisation. Nous avons vérifié que la forme de l'énergie des plis et le potentiel de confinement n'influencent pas les propriétés statistiques du système. L'auto-évitement est imposé par une énergie de coeur dur \mathcal{E}_{hc} où apparaît l'épaisseur réduite \bar{h} de la ligne. En définitive, l'énergie réduite du système s'écrit

$$\mathcal{E} = \sum_i \tan^{7/3} \phi_i + \lambda \oint \mathbf{R}^2(s) ds + \mathcal{E}_{hc}. \quad (1.13)$$

$\mathbf{R}(s)$ représente la position de la ligne en fonction de l'abscisse curviligne. Il y a deux

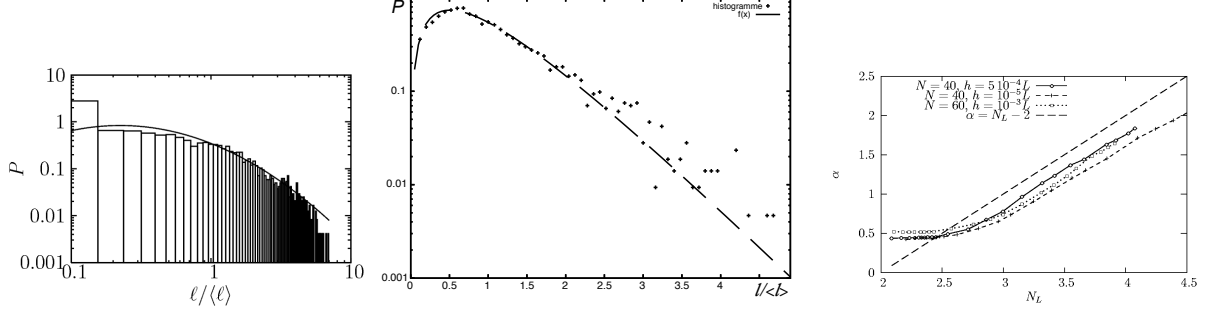


FIG. 1.6 – Statistique des tailles. **a,b** Histogrammes des longueurs normalisées par la longueur moyenne ($N = 60$ et $\bar{h} = 10^{-3}$) : **a** confinement faible $\lambda = 900$ et ajustement à une loi log-normale de paramètre $\sigma = 1.59 \pm 0.03$, **b** confinement fort $\lambda = 10^6$ et ajustement à une loi gamma de paramètre $\alpha = 1.59 \pm 0.03$; **c** Paramètre α de la loi gamma en fonction du nombre de couches N_L dans le système.

paramètres fixés, le nombre de plis N et l'épaisseur \bar{h} ; le paramètre de contrôle est l'intensité du confinement λ . Pour des raisons numériques, nous avons rajouté une énergie de coeur dur de portée \bar{h} entre deux plis consécutifs. La minimisation de l'énergie est faite de manière à obtenir un grand nombre d'échantillons indépendants pour les étudier statistiquement.

Pour un échantillon donné, nous avons observé que les configurations dépendent un peu de la séquence de confinements appliqués : il y a un grand nombre d'états d'équilibre métastable, ce qui donne un caractère de verre au système. Nous avons mesuré le rayon de gyration $R_g = \langle |\mathbf{R}(s)| \rangle$ moyenné sur toutes les configurations. Le confinement λ diverge pour un rayon minimal R_g^j pour lequel le système est bloqué :

$$R_g - R_g^j \sim \lambda^{-\alpha}, \quad (1.14)$$

avec $\alpha = 0.3 \pm 0.1$. Ces caractéristiques indiquent une transition de blocage proche de celle des empilements granulaires. Par ailleurs, un examen des configurations montre que le système s'ordonne localement avec quelques portions quasi-parallèles. Les distributions de probabilité des angles sont assez plates et s'annulent en $\pm\pi/2$.

En ce qui concerne les distribution des distances entre plis, nous avons observé deux régimes. A faible confinement ($1 < \lambda \lesssim 10^4$ or $1 > 2\pi R_g \gtrsim 0.2$) et lorsque λ augmente, une séquence de transitions de flambage vers l'intérieur permet de réduire le rayon de la boule. Or la division hiérarchique d'une ligne conduit à une loi log-normale de densité de probabilité [60]

$$P_{\text{LN}}(x = \ell/\langle\ell\rangle) = \frac{1}{\sigma x \sqrt{\pi}} \exp \left[- \left(\frac{\ln x}{\sigma} + \frac{\sigma}{4} \right)^2 \right], \quad (1.15)$$

qui décrit raisonnablement nos histogrammes pour $\ell > \bar{h}$ (Fig. 1.6a). Le paramètre σ dans l'intervalle 1,0–1,8 est comparable au 1,2–1,4 trouvé dans les expériences de [5] effectuées à faible confinement $2\pi R_g \gtrsim 0.6$. A fort confinement ($\lambda \gtrsim 10^4$ or $2\pi R_g \lesssim 0.2$), nos histogrammes sont mieux décrits par des lois gamma (Fig. 1.6b)

$$P_{\Gamma}(x = \ell/\langle\ell\rangle) = \frac{(\alpha x)^{\alpha}}{\Gamma(\alpha)x} \exp(-\alpha x). \quad (1.16)$$

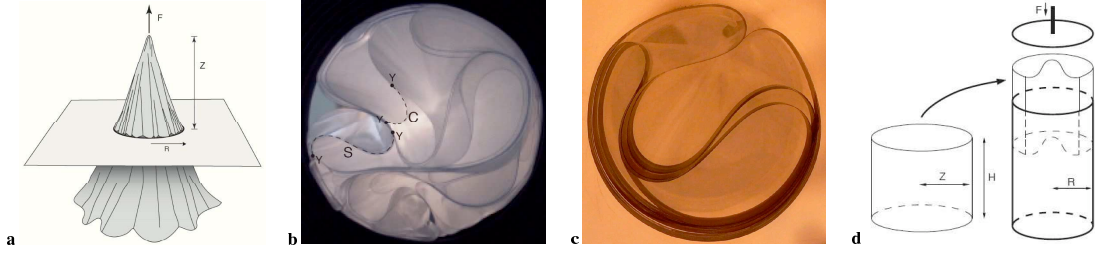


FIG. 1.7 – Confinement quasi-bidimensionnel de plaques. **a** Dispositif de compactage conique : une feuille de rayon 40 cm est tirée à travers un trou de 1 à 2 cm ; **b** configuration observée à fort confinement ($p = 15\%$) ; exemple de points-Y, courbe-S et courbe-C ; **c** configuration à faible confinement ($p = 3\%$) : une courbe-S est enfermée par des courbes-C formant un container effectif plus petit que le trou ; **d** dispositif de compactage cylindrique : une feuille refermée en cylindre est introduite dans un tube en Plexiglas de rayon intérieur $R = 2,6$ cm ; la force nécessaire pour pousser la feuille est mesurée.

En fait, la division aléatoire non hiérarchique d'un intervalle devrait donner une distribution exponentielle. Mais à fort confinement, les segments tendent à s'aligner et leurs longueurs se corrélient. Si l'on définit le nombre de couche du système N_L comme le nombre moyen d'intersections d'une demi-droite d'extrémité le centre du potentiel avec la ligne brisée – N_L varie de 1 à 5 pour les configurations obtenues – alors on s'attend à ce que la distribution de tailles soit décrite par la moyenne de N_L variables aléatoires de distribution exponentielle, *i. e.* une loi gamma de paramètre $\alpha = N_L$. Nous avons mesuré α en fonction de N_L (Fig. 1.6c) et nous avons trouvé $\alpha = a N_L - b$ avec $a = 0.95 \pm 0.1$ et $b = 2.05 \pm 0.2$, à fort confinement. Le décalage de 2 par rapport à notre argument signifie simplement que les couches ne sont pas complètement corrélées.

Nous avons donc montré une transition des statistiques de distributions log-normales vers de des distributions gamma. Des simulations numériques complètes de plaques [59] ne permettent pas de distinguer entre les deux. De nouvelles expériences à fort confinement sont donc nécessaires.

Référence : E. Sultan & A. Boudaoud. Statistics of crumpled paper. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 136103 (2006).

1.5 Compactage quasi-bidimensionnel

A fort confinement, il est difficile de mesurer configurations et forces simultanément : jusqu'à présent, les expériences étaient restreintes soit à la résistance de la feuille à une compression anisotrope (voir [41] et ses références), soit à la caractérisation de la géométrie d'une feuille dépliée ([5] et références). Nous avons conçu un système permettant la compression isotrope d'une feuille et l'observation des configurations, en la confinant de manière quasi-bidimensionnelle.

Le principe est de tirer une feuille d'épaisseur h et de rayon R_F tenue en son milieu à travers un petit trou (Fig. 1.7a). Le paramètre de contrôle est la distance Z entre le plan du trou et le point d'application de la force F , que l'on mesure également. En première approximation, la forme de la feuille est développable donc conique, sa forme étant

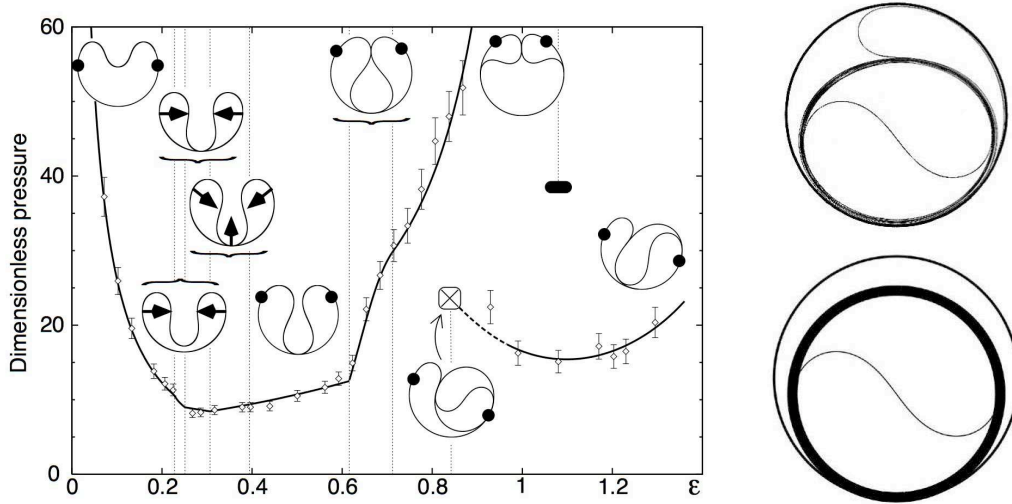


FIG. 1.8 – *Compactage cylindrique* **a** Premières étapes. Pression adimensionnée par B/R^3 en fonction du périmètre réduit du cylindre $\varepsilon = L/(2\pi R)$: expérience (carrés) et théorie (lignes). Les pointillés montrent où la branche de configurations asymétriques devient métastable et la croix indique la terminaison de cette branche. Sur les configurations, les disques indiquent les points de décollement du container et les flèches les zones de contact réduites à des points. Les configurations numériques sont indistingables des configurations expérimentales, sauf pour $0,23 < \varepsilon < 0,39$. **b** Configuration expérimentale spiralée pour $\varepsilon = 9,4$ avec une courbe-S donnant au centre une forme de Yin et Yang. **c** Forme théorique du Yin et Yang à grand ε .

prescrite par celle de sa section dans le plan du trou, une courbe fermée de longueur $L = 2\pi Z$ enfermée dans un disque de rayon R ; d'où un confinement quasi-bidimensionnel. En outre, le confinement est isotrope dans le plan du trou. L'intensité du confinement est mesurée par le rapport p entre l'aire occupée par la feuille Lh et celle du trou πR^2 . A grand confinement (Fig. 1.7b), les configurations deviennent complexes ; un alignement local apparaît, des courbes étant formées par assemblage de couches. Pour caractériser la topologie, nous pouvons introduire (i) les points-Y, où un assemblage de couches bifurque en deux paquets, (ii) les courbes joignant deux points-Y, les courbes-C et les courbes-S, avec et sans point d'inflexion, respectivement. Les courbes-S semblent en général enfermées dans des containers effectifs constitués de courbes-S, comme dans la configuration à faible confinement de la figure 1.7c. Ainsi, nous remplissons notre objectif de mesure simultanée de la force et des configurations avec ce montage de *compactage conique*. Toutefois, l'interprétation de la force est délicate, car elle mêle friction sur le bord du trou et re-configuration de la feuille.

Voilà pourquoi nous avons eu recours à un autre montage pour l'étude systématique des premières étapes du compactage. A haut confinement et dans le voisinage du trou, un cône est évidemment proche d'un cylindre. En outre, un cône et un cylindre sont décrits par l'équation de l'*elastica* d'Euler [14], seule la condition d'inextensibilité/développabilité ne prenant pas la même forme. Dans le montage pour *compactage cylindrique*, une feuille refermée en cylindre de hauteur H et de périmètre L est introduite dans un tube de plus petit rayon R . Nous mesurons la force F nécessaire pour la translater dans le container.

Comme il n'y a pas de re-configurations, la loi de Coulomb relie directement F à la pression moyenne P exercée par la feuille sur le container,

$$F = 2\pi RHfP, \quad (1.17)$$

f étant le coefficient de friction dynamique (à faible vitesse). La figure 1.8 montre les mesures de pression P pour les premières étapes du confinement, ainsi que les résultats de simulations numériques des équations des tiges où l'on tient compte de toutes les conditions aux limites : sur le container et aux points-Y, équilibre des forces et des moments. Une série de transitions topologiques conduit de configurations avec un axe de symétrie à des configurations asymétriques où la feuille s'enroule en spirale avec une boucle sur le côté et un centre en forme de Yin et Yang.

Le compactage quasi-bidimensionnel génère donc des structures spiralées. En effet, à deux dimensions, une spirale de pas h donne la structure la plus compacte à une tige d'épaisseur h . Une seule spirale persisterait s'il n'y avait pas de friction entre couches. D'ailleurs, la reproductibilité des mesures de force pour les configurations asymétriques (Fig. 1.8a) nécessite de taper sur la feuille lorsqu'elle est introduite dans le cylindre. Ces résultats ne constituent donc qu'une première étape avant l'étude de configurations complexes telles que celle de la figure 1.7b.

Référence : L. Boué, M. Adda-Bedia, A. Boudaoud, D. Cassani, Y. Couder, Spirals in the packing of flexible structures. *Phys. Rev. Lett.* **97**, 166104 (2006).

Clôture

Pour résumer, nous avons montré comment mesurer l'énergie du coeur d'un d-cône et appliqué cette méthode à une géométrie de référence ; notre résultat est cohérent avec les prédictions, mais le mystère de la sélection de la taille d'un d-cône demeure complet. Nous avons étudié expérimentalement et théoriquement, le fort confinement de tiges et de plaques élastiques. L'auto-évitement et la friction induisent (i) une multiplicité d'états possibles et une physique qui se rapproche de celle des verres avec une possible transition de blocage à haute densité, (ii) un alignement local du système et des structures spiralées, (iii) un spectre large de tailles caractéristiques. Toutefois, ces éléments de compréhension restent à approfondir. Dans la suite du mémoire, nous conservons le même type de systèmes physiques, mais nous nous intéressons aux formes induites par le flambage.

Chapitre 2

Croissance et flambage

« Elle y avait trouvé une grande robe en taffetas flambé, qui criait du froissement de ses plis. »

Gérard de Nerval, *Sylvie*.

Dans le chapitre précédent, les objets élastiques considérés étaient soumis à des contraintes externes appliquées par un container ; ici, par contre, les contraintes mécaniques sont imposées en volume et varient spatialement. Quel est la forme d'un objet élastique soumis à un gradient de contraintes ? Comme nous le verrons, un tel gradient peut être généré par des différences de taux de croissance pour un objet élastique vivant, par des variations des propriétés physico-chimiques dans le cas des gels, par un écoulement plastique dans le cas de feuilles déchirées ou par des différences de dilatation thermique pour les films collés à un substrat. En préambule, nous montrons le rôle de l'élasticité dans la croissance de cellules vivantes. Ensuite, nous passons en revue trois systèmes physiques : les gels, les feuilles plastiques déchirées et les films collés. A travers ces systèmes, nous étudions essentiellement deux géométries : une plaque soumise à un gradient dans son plan – ce qui correspond à la croissance différentielle d'un tissu mince, une feuille de plante par exemple – et une plaque croissant sur un substrat mou – ce qui correspond à la croissance différentielle d'un tissu multi-couches, le cerveau par exemple. Pour des revues, on pourra se reporter à [2, 16, 28, 54, 55]. Nos travaux s'inspirent partiellement du vivant pour aborder la problématique plus générale de la morphogenèse contrainte par la géométrie.

2.1 Taille d'une cellule à paroi

Les cellules vivantes possèdent des membranes lipidiques ; certaines ont en outre des parois polymériques (la cellulose pour les cellules des plantes) qui sont bien plus rigides et épaisses que les membranes. Nous nous intéressons à la croissance de cellules isolées possédant des parois. Les exemples de telles cellules vont des bactéries aux algues géantes, en passant par les poils de l'oreille interne, les poils des racines des plantes, les tubes de pollen, les moisissures et les levures. Leurs tailles vont ainsi de la fraction de μm à la fraction de mm. Plusieurs approches furent utilisées pour comprendre la croissance et la forme de ces cellules : tension de surface [34], déposition ballistique [29], croissance limitée par la diffusion [20, 31, 47] et élasticité [30, 54, 57] ; toutefois, elles concernent le

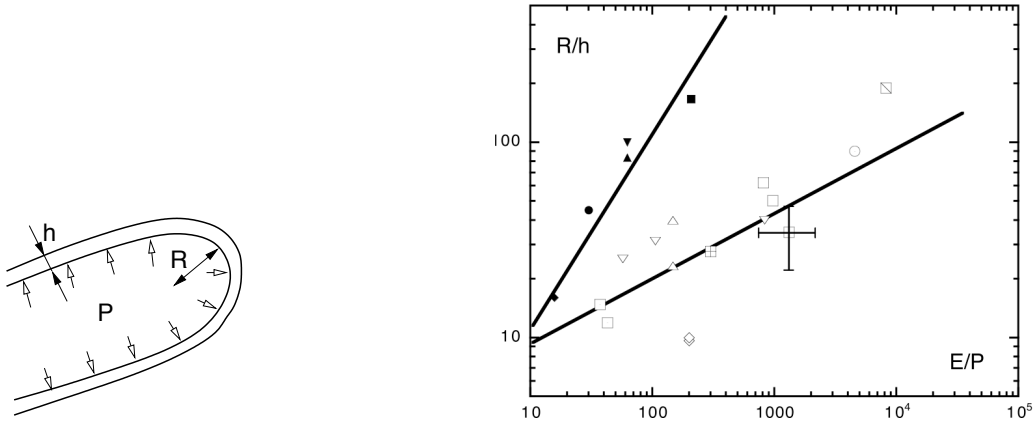


FIG. 2.1 – Cellules à paroi isolées. **a** Schéma. **b** Rapport d'aspect (rayon/épaisseur) en fonction du rapport module élastique/pression osmotique. Bactéries (symboles pleins) ; poils de racines de plantes, algues, champignons, levures (symboles creux) – détails dans la publication.

plus souvent un organisme précis et manquent de résultats quantitatifs.

D'un point de vue mécanique, les cellules à paroi sont plus simples que les cellules animales dont la forme est essentiellement contrôlée par le cytosquelette. Nous pouvons les représenter par des coques élastiques minces d'épaisseur h et de module élastique E (les parois) contenant un liquide (le cytoplasme) sous la pression osmotique P , qui est le moteur de la croissance. La croissance est équivalente à une déformation plastique de la paroi avec rajout de matériau pour maintenir l'épaisseur de la paroi. Comme la croissance est lente, la cellule est en équilibre mécanique. Soit R le rayon de courbure caractéristique de la cellule. Trois types d'énergie sont mises en jeu : l'énergie de traction de la paroi d'ordre EhR^2 , l'énergie de flexion de la paroi Eh^3 et le travail de la pression osmotique PR^3 . Par conséquent, nous pouvons construire deux échelles caractéristiques pour la cellule, en équilibrant traction et pression,

$$R_t = \alpha_t h \frac{E}{P}, \quad (2.1)$$

ou en équilibrant flexion et pression,

$$R_f = \alpha_f h \left(\frac{E}{P} \right)^{1/3}. \quad (2.2)$$

Si l'on sépare les données compilées dans la figure 2.1b en deux groupes – les bactéries et les autres – chaque loi d'échelle est à peu près en accord avec l'un des deux groupes. En outre, l'ajustement aux données donne $\alpha_t = 1,0$ et $\alpha_f = 4,0$, du même ordre que les valeurs $\alpha_t = 0,9$ et $\alpha_f = 0,58$ prédites à l'aide de considérations un peu plus quantitatives.

Ainsi est illustré l'effet des contraintes sur la croissance et démontré le rôle biologique de l'élasticité. Des prolongations de cette étude consisteraient à tenir compte de l'anisotropie des parois et de la dynamique de la croissance.

Référence : A. Boudaoud. Growth of walled cells : From shells to vesicles. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 018104 (2003).

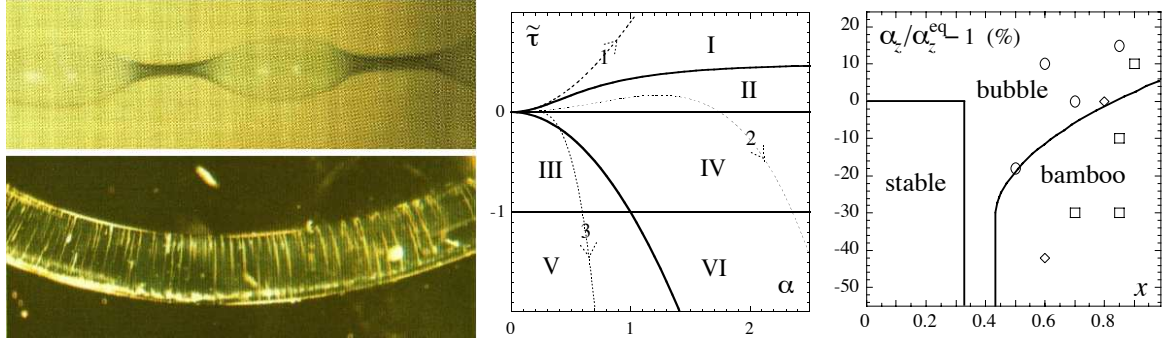


FIG. 2.2 – Dégonflement d'un cylindre de gel de polyacrylamide. **a** Bulles, **b** bambou, d'après [42] ; **c** diagramme de phase à l'équilibre en fonction du rapport des élongations $\alpha = \alpha_z/\alpha_r$ axial et radial du gel et de la courbure de l'énergie de mélange $\tilde{\tau}$ (voir texte) ; **d** diagramme de phase en fonction de l'élongation axiale α_z et de proportion x d'acétone dans le solvant ; théorie (lignes) et résultats expérimentaux de [42] : bambou (carré), bulles (cercles), mixe bambou-bulle (croix) et surface frippée (losange).

2.2 Les gels comme système modèle

Un gel est constitué d'un réseau polymérique plongé dans un solvant ; sa rigidité est déterminée par la concentration en ponts entre polymères. Un gel de polyamide placé dans des conditions physico-chimiques convenables (changement de température, de pH, pression osmotique...), peut absorber du solvant et ainsi gonfler ; ce gonflement est similaire à la croissance d'un tissu vivant par addition de matière, mais la grande différence est que le module élastique du gel diminue lors du gonflement car il devient moins dense. De nombreuses expériences ont suivi celles du groupe de Tanaka sur ces gels (Pour une revue, voir notre première publication sur les gels). Plusieurs aspects de la morphogenèse dans les gels – l'apparition de points de rebroussement par exemple – demeurent mal compris.

2.2.1 Dégonflement d'un cylindre

Les gels peuvent aussi se dégonfler dans des conditions physico-chimiques convenables, comme mis en évidence par des expériences du groupe de Tanaka sur des gels de N-isopropylacrylamide, expériences qui n'ont été comprises que très partiellement. Par exemple, un cylindre de gel dont les deux extrémités sont fixées et qui est plongé dans un mélange eau-acétone subit deux types d'instabilité : dans le premier (bulles, fig. 2.2a), la forme cylindrique est perdue et le rayon du gel varie périodiquement le long de son axe, avec une longueur d'onde proportionnelle au rayon du cylindre $\lambda \sim R$; dans le second (bambou, fig. 2.2b), il reste cylindrique et est traversé périodiquement par des plans où il a rétréci, avec une longueur d'onde proportionnelle à la racine carrée du rayon du gel $\lambda \sim \sqrt{R}$; cette dernière observation est surprenante car elle implique l'existence d'une autre échelle de longueur que le rayon. C'est la raison pour laquelle nous avons travaillé à l'interprétation de ces résultats.

Si un élément du gel est déplacé de sa position de référence \mathbf{r}^0 à une position \mathbf{r} , alors

la déformation du réseau est décrite par la matrice $M_{ij} = \partial \mathbf{r}_i / \partial \mathbf{r}_j^o$. La fraction volumique du polymère ϕ y est reliée par $\phi/\phi_0 = 1/\det M$, ϕ_0 étant la fraction volumique dans l'état de référence. Nous écrivons l'énergie du gel comme une généralisation de l'énergie libre de Flory [26], soit la somme d'une énergie de mélange, d'une énergie de déformation du réseau polymérique et d'une pénalisation des fluctuations de densité :

$$\mathcal{E}/k_B T = \int d\mathbf{r} \left\{ f(\phi) + \frac{1}{2} \frac{\mu_0 \phi}{\phi_0} \text{trace}(M^t M) + \frac{1}{2} K(\phi) |\nabla \phi|^2 \right\}. \quad (2.3)$$

$\mu = \mu_0 \phi / \phi_0$ représente la densité de ponts (qui détermine la rigidité du gel) et $l = \sqrt{K/\mu}$ la longueur de corrélation des fluctuations de densité dans le gel.

Nous avons étudié la stabilité linéaire d'un cylindre de gel initialement de rayon R_0 et de longueur L_0 ; une fois placé dans le nouveau solvant (un mélange eau-acétone), ses deux extrémités sont fixées à une distance L et son rayon diminue jusqu'à R . L'état élastique est déterminé par les elongations radiale $\alpha_r = R/R_0$ et axiale $\alpha_z = L/L_0$. S'il n'y avait que l'énergie de mélange, le comportement serait régi par le signe de $\tau = f''(\phi)$ – le gel serait stable si $\tau > 0$ et on s'attendrait à une décomposition spinodale si $\tau < 0$. Ici les effets mécaniques se couplent à l'affinité polymère/solvant. Ce couplage est mesuré par le rapport $\tilde{\tau} = \tau/(\mu \alpha_r^2)$. Nous avons trouvé 6 phases possibles (Fig. 2.2c). (I) Le cylindre est stable. (II) *Bulles* : le rayon oscille le long de l'axe avec une longueur d'onde $\lambda \sim R$. (III) *Bambou* : le gel reste cylindrique en étant traversé par des plans plus denses séparés d'une longueur $\lambda \sim \sqrt{\ell R}$. (IV) *Décomposition spinodale en surface* : l'instabilité est localisée au voisinage de la surface, avec une longueur d'onde $\lambda \sim l$. (V) *Formation d'une peau* : la densité du voisinage de la surface augmente uniformément. (VI) *Décomposition spinodale radiale* : décomposition invariante dans la direction axiale. Les phases (I-III) correspondent aux observations expérimentales. L'interprétation des autres phases est moins évidente ; les cylindres frippés pourraient être provenir d'un mélange des phases (IV) et (VI). Moyennant un nombre d'hypothèses détaillées dans la publication, nous sommes parvenus à un diagramme en accord semi-quantitatif avec les expériences (Fig. 2.2d).

Nous avons donc montré que le couplage entre élasticité du réseau polymérique et affinité entre le polymère et le solvant suffit à décrire les expériences. En particulier, nous avons mis en évidence une forme de décomposition spinodale limitée par l'élasticité. Dans la suite, nous continuons à utiliser les propriétés remarquables des gels de polyamide.

Référence : A. Boudaoud & S. Chaïeb. Mechanical phase diagram of shrinking cylindrical gels. *Phys. Rev. E* **68**, 021801 (2003).

2.2.2 Gonflement d'une bande

Nous voulions apprendre à utiliser les gels pour concevoir diverses géométries de gradient de contraintes imposées. Le principe est de produire des blocs de gels de polyacrylamide de compositions chimiques différentes (voir la publication pour les compositions exactes) : la concentration en ponts détermine leur rigidité et la concentration en groupes ioniques détermine leur affinité pour l'eau, et par conséquent, leur taux de gonflage quand ils sont placés dans un excès d'eau. Un moule recueille la première composition ; après gélification, une autre composition est rajoutée ; les deux parties sont ainsi liée chimiquement par les ponts de la seconde préparation.

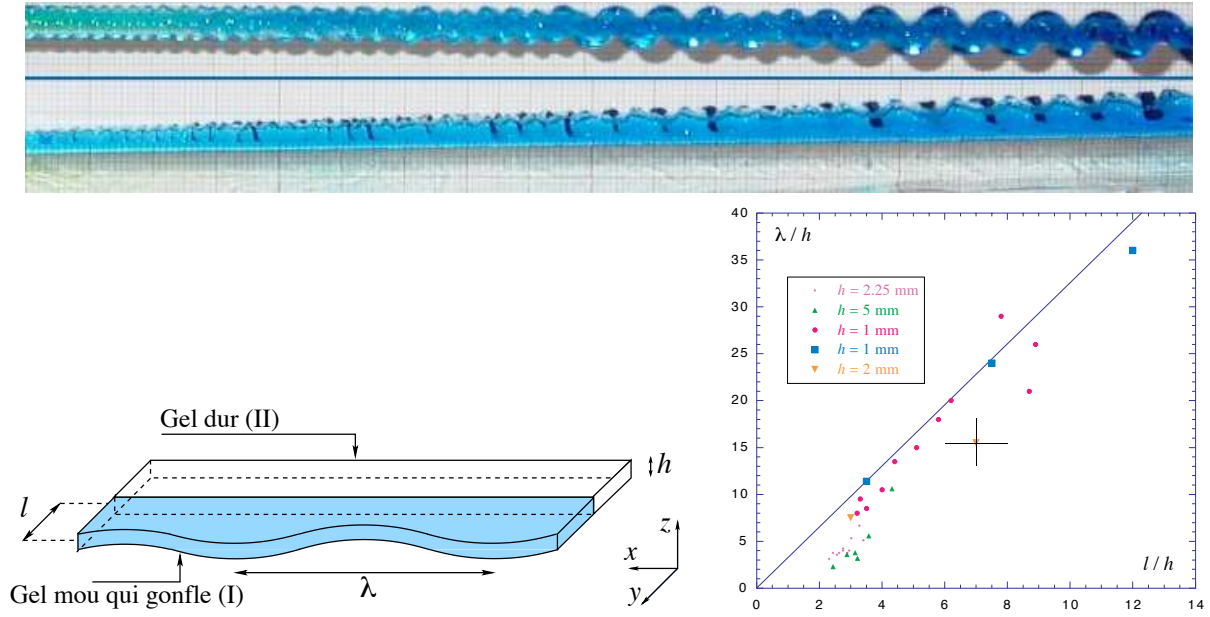


FIG. 2.3 – Gonflement d’une bande. **a** Bande de gel mou ($E = 5 \cdot 10^3$ Pa) qui gonfle (d’un facteur 6 en volume) d’épaisseur initiale $h = 2$ mm et de largeur variable (coloré en bleu), accolée à une bande de gel dur ($E = 3 \cdot 10^5$ Pa) qui ne gonfle pas (transparent) ; vue de côté (haut) et de dessus (bas) ; on peut observer la transition entre des ondulations variqueuses avec des points de rebroussement (gauche) au flambage proprement dit (droite). **b** Schématisation de l’expérience. **c** Longueur d’onde de flambage en fonction de la largeur de la bande.

La géométrie la plus simple que nous avons étudiée est celle de la figure 2.3. Une bande de gel mou qui gonfle est accolée à une bande de gel dur qui ne gonfle pas. Après mise à l’équilibre dans l’eau, le gel mou flambe si la largeur ℓ est assez grande ; sinon, une suite de points de rebroussement apparaît à la surface. Nous avons étudié la stabilité linéaire de cette bande en utilisant l’élasticité linéaire et les équations des plaques – ce qui est valable quand la largeur ℓ est grande devant l’épaisseur h . La longueur d’onde λ est proportionnelle à la largeur

$$\lambda = 3.256 \ell. \quad (2.4)$$

L’accord avec les mesures est raisonnable pour les bandes minces (Fig. 2.3c). Une approche plus complète devrait utiliser un formalisme d’élasticité non-linéaire similaire à celui de la section précédente. Nous avons également étudié expérimentalement et théoriquement le flambage d’une couronne de gel mou accolé à un disque de gel dur. Ainsi la faisabilité de notre objectif est démontrée. Nous utilisons les mêmes techniques expérimentales dans la section suivante. Il est à noter que le flambage de la bande est un cas très particulier de plaque avec une métrique variable abordé dans la section 3.

Référence : T. Mora & A. Boudaoud. Buckling of swelling gels. *Eur. J. Phys. E* **20**, 119-124 (2006).

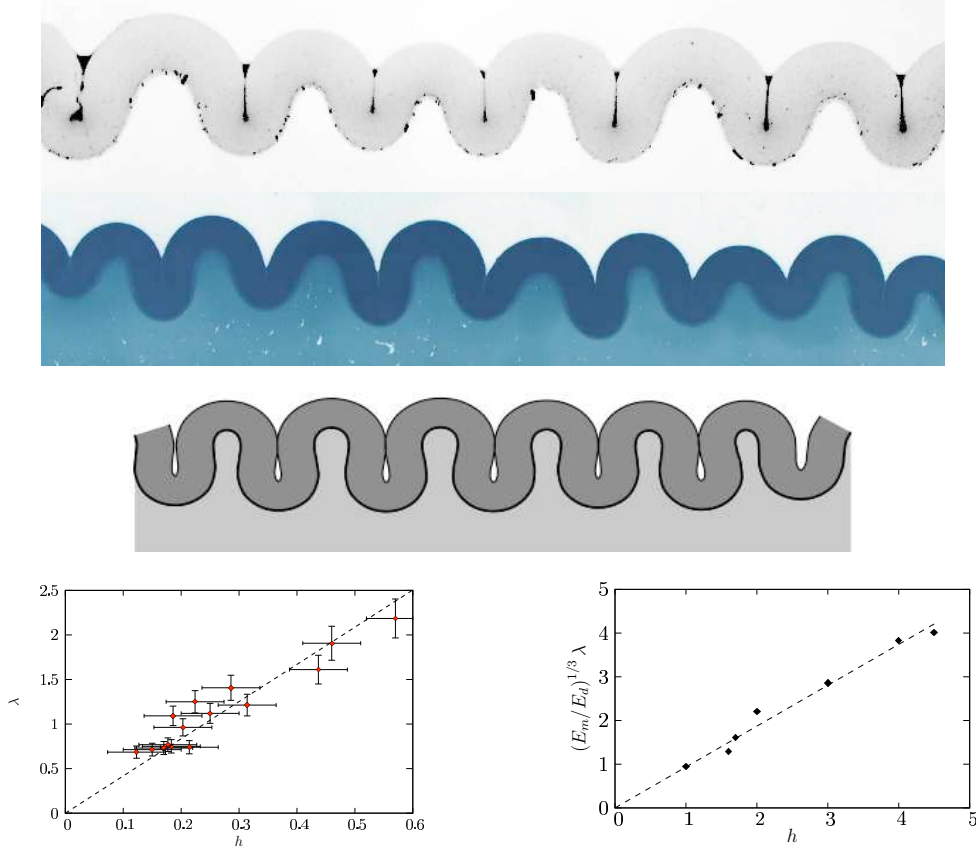


FIG. 2.4 – Gonflement d’une tige sur substrat mou. **a,b** Expérience : une couche de gel dur ($E_d = 5 \cdot 10^4$ Pa) d’épaisseur $h = 2$ mm qui a gonflé d’un facteur 3 en volume, sur un substrat épais de gel mou ($E_m = 5 \cdot 10^3$ Pa). **c** Simulation numérique : mêmes paramètres, sauf pour le gel mou ($E_m = 400$ Pa) **d,e** Longueur d’onde en fonction de l’épaisseur du gel : expérience (**d**) et numérique (**e**).

2.2.3 Gonflement sur un substrat

Dans la seconde géométrie, nous préparons un substrat épais et mou qui ne gonfle pas entre deux plaques de verre puis, par dessus, une couche mince d’épaisseur h de gel dur qui gonfle. Quand on rajoute de l’eau, la couche supérieure se déforme parallèlement aux plaques de verre et flambe. L’aspect remarquable de ces formes est que des points de rebroussement apparaissent à la surface supérieure (Fig. 2.4a). A compositions des gels fixées, la longueur d’onde λ de la forme obtenue est approximativement proportionnelle à l’épaisseur h (Fig. 2.4c) et ne dépend pas de la distance entre les plaques de verre tant qu’elle est assez petite par rapport à λ . L’analyse de stabilité linéaire d’une tige ou d’une plaque comprimées (module E_d) sur un substrat semi-infini (module E_m) donne la longueur d’onde [54]

$$\lambda \sim (E_d/E_m)^{1/3} h, \quad (2.5)$$

du même ordre de grandeur que dans nos expériences.

Plus quantitativement, nous avons simulé numériquement une tige auto-évitante sur un lit de ressorts de raideur $K = 4\pi E_m/3\lambda$ – ils sont strictement équivalents au demi-



FIG. 2.5 – **a** Un mécanisme de génération de singularités lors de l'oscillation d'une structure. Une courbe et ses premières courbes parallèles singulières. **b** Un film comprimé sur un substrat rigide peut se décoller sur des zones qui ressemblent à des fils de téléphone – les singularités de la forme sont identiques à la partie (a) de la figure.

espace élastique de module E_m et de coefficient de Poisson $1/2$ pour un déplacement sinusoïdal de longueur d'onde λ de la surface. Si $(x(s), y(s))$ représente la position du point courant de la surface de séparation et $c(s)$ la courbure de la ligne neutre de la tige, alors l'énergie du système se met sous la forme

$$\frac{\mathcal{E}}{\delta} = \frac{1}{2} \int_0^L \left\{ Bc^2(s) + K \left(x(s) - s \frac{x(L)}{L} \right)^2 + Ky^2(s) \right\} ds - \mu(x(L) - x(0)) + \mathcal{E}_{hc} \quad (2.6)$$

δ est la taille du système perpendiculairement au plan où il se déforme, B le module de flexion de la tige, L sa longueur, μ la force compressive qui est ajustée pour imposer le rapport entre la longueur de la tige après et avant gonflement ; le dernier terme représente la répulsion de coeur dur entre différentes parties de la tige. Les résultats des simulations donnent des formes similaires aux formes expérimentales (Fig. 2.4d) et les longueurs d'onde obéissent à la loi d'échelle 2.5. Ainsi l'auto-évitement de la tige est important pour son état d'équilibre.

Pour mieux comprendre l'origine des points de rebroussement, considérons une courbe \mathcal{C} de période λ et d'amplitude A (Fig. 2.5a) et les courbes qui lui sont parallèles, obtenues par une translation de distance d le long de chaque normale à \mathcal{C} . Augmentons progressivement d . Il est aisé de se convaincre que ces courbes deviennent singulières quand d atteint le plus petit rayon de courbure de \mathcal{C} ; les singularités sont alors localisées aux centres de courbure correspondant et consistent en des discontinuités de pente ou en des points de rebroussement. Il en résulte la limite pour laquelle une structure physique ondulante d'épaisseur h a des bords réguliers, i.e. $h \sim \lambda^2/A$. Les singularités correspondent aux caustiques de rayons suivant les normales aux courbes. Cet argument s'applique à l'apparition de singularités dans notre système, dans le gonflement de blocs épais de gel de [56] ou aux figures de délaminage en fil de téléphone (Fig. 2.5a). On pourrait s'attendre au même phénomène pour des cristaux liquides smectiques avec ancrage normal sur une paroi ondulée.

Référence : E. Sultan & A. Boudaoud. Cusps in the buckling of a film bound to an elastic foundation. En préparation (2006).

2.3 Plastique déchiré et feuilles de plante

Les expériences de [53] ont montré que les feuilles de certains plastiques acquièrent un bord ondulant avec des fronces auto-similaires lorsqu'elles sont déchirées (Fig. 2.6a). Les feuilles de certaines plantes – salade ou betterave par exemple – ont aussi des bords oscillant à plusieurs échelles. Le flambage du bord a une origine simple – le bord est allongé par déformation plastique lors du déchirement ou par une croissance plus forte pour les plantes – mais la forme fractale est plus mystérieuse.

Nous considérons une plaque (Fig. 2.6b) munie d'une métrique

$$ds^2 = (1 + g(y))^2 dx^2 + dy^2. \quad (2.7)$$

qui traduit l'allongement du bord d'un facteur $1 + g(y)$ dans la direction x , g décroissant en s'éloignant du bord¹. Cette forme est la plus générale si le système est invariant dans la direction y . Notre première approche consistait à isoler un ruban étroit de largeur w parallèle au bord et centré en $y = y_0$. Les deux côtés du ruban n'ont pas la même longueur d'équilibre, ce qui lui donne une courbure (d'équilibre) intrinsèque $1/\rho \simeq -g'(y_0)$ (on considère $g \ll 1$). Avec les bonnes conditions aux limites, ce ruban oscille avec une longueur d'onde proportionnelle à ρ . Si l'on découpe toute la surface en rubans, on voit que la longueur d'onde préférée augmente si $g'' > 0$ (condition dont la signification apparaît ci-dessous), ce qui expliquerait une forme multi-échelles.

Revenons à la plaque munie de la métrique (2.7). Les déplacements sans traction correspondent à des plongements isométriques de cette métrique dans l'espace à trois dimensions. D'après le théorème de Gauss, ces plongements auraient une courbure de Gauss donnée par

$$G_0(x, y) = -g''(y). \quad (2.8)$$

Autrement dit, il n'y a pas de traction si $G = G_0$ partout. $g'' < 0$ signifie que $G_0 > 0$ et que la surface est hyperbolique. L'énergie élastique de la plaque (1.2) est remplacée par

$$\mathcal{E} = \int \int \left\{ \frac{1}{2} B M^2 + \frac{Eh}{8} (\Delta^{-1}(G - G_0))^2 \right\} dx dy. \quad (2.9)$$

Nous avons implémenté la minimisation de l'énergie élastique dans une approximation adiabatique² dans la direction y , le Laplacien inverse étant approché par $\Delta^{-1}(G - G_0) \simeq \int^x dx_1 \int^{x_1} dx_2 (G - G_0)(x_2)$. Le déplacement transverse $\xi(x, y)$ est représenté en Fourier dans la direction x et en éléments finis dans la direction y . Cette méthode conduit à des simulations rapides et interactives, ce qui permet de « guider » le système parmi tous les minima métastables.

Nous trouvons effectivement, pour des fonctions g ressemblant à des lois de puissance, des formes fractales (Fig. 2.6b) avec les longueurs d'onde $\lambda, \lambda/3, \lambda/3^2 \dots$. Ce facteur $a = 3$ d'auto-similarité s'explique comme suit. Les équations sont invariantes par la symétrie de plan $z = 0$, d'où le développement en Fourier de la solution

$$\xi(x, y) = \sum_i \xi_i(y) \cos(2\pi(2i + 1)x/\lambda) \quad (2.10)$$

¹Notons que la géométrie du flambage d'une bande de gel correspond au cas où g est une fonction de Heaviside.

²Cette approximation est formulée différemment dans la publication.

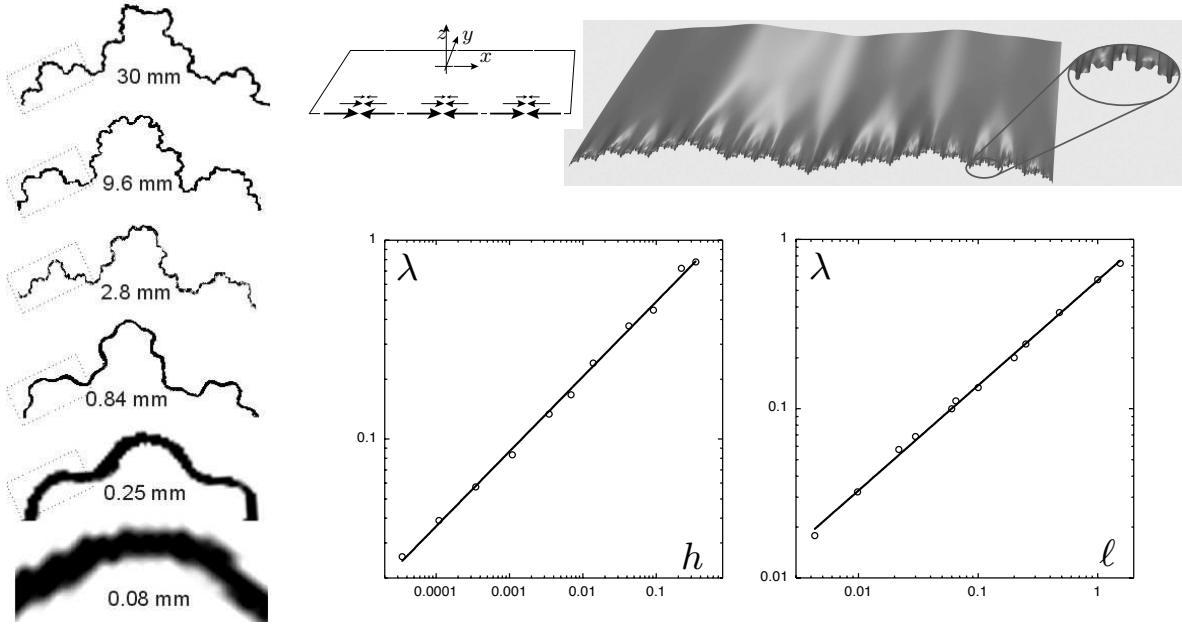


FIG. 2.6 – Flambage auto-similaire. **a** Bord d’une feuille plastique déchirée avec 6 générations [53] – un agrandissement de 3,2 redonne la même forme. **b,c,d** Simulations numériques pour des perturbations à la métrique euclidienne de la forme $g(y) = 1/(1 + y/\ell)$: **b** forme de plaque avec cinq générations pour $h/L = 2,9 \cdot 10^{-5}$, et $\ell/L = 8 \cdot 10^{-3}$ – le facteur d’agrandissement vaut 3 ; **c** plus petite longueur d’onde λ en fonction de l’épaisseur de la plaque h et ajustement à une loi de puissance (qui donne un exposant 0,38) ; **d** plus petite longueur d’onde λ en fonction de la longueur caractéristique ℓ de la métrique et ajustement à une loi de puissance (exposant 0,62).

ne contient que des harmoniques impairs ; l’auto-similarité doit transformer des harmoniques impairs en des harmoniques impairs, d’où un facteur d’agrandissement a impair. Dans les simulations, nous trouvons en général $a = 3$ proche du 3,2 expérimental, et parfois $a = 5$, ce qui a aussi été observé dans les expériences. Les composantes $\xi_i(y)$ de Fourier du profil se déduisent aussi les unes des autres par des dilatations convenables. Par contre, l’existence ou non de plongements isométriques est une question *a priori* difficile³. Les simulations indiquent que les minima d’énergie proche du minimum absolu correspondent à des plongements car, quand $h \rightarrow 0$, leur énergie tend plus vite vers 0 que Uh . Puisqu’il « existe » des états sans traction, la courbure de Gauss de la surface doit vérifier $G = c_1 c_2 = G_0 = -g''$. Si l’on minimise l’énergie de flexion $1/2 B(c_1 + c_2)^2$, on trouve en gros $c_1 = c_2 = \sqrt{-g''}$, soit des courbures plus grandes au bord, et par conséquent des longueurs d’onde augmentant du bord vers l’intérieur. Ces arguments permettant de comprendre la génération de formes auto-similaires, il reste à déterminer les échelles de coupure pour les longueurs d’onde. La plus grande est évidemment de l’ordre de la taille du système (la largeur de la plaque) et la plus petite⁴ $\lambda \sim h^{1/3} \ell^{2/3}$ est déterminée par un équilibre entre flexion et traction à petite échelle.

Nous avons donc montré que l’élasticité des plaques, associée à une contrainte intrinsèque donnée par la métrique explique les observations sur les feuilles plastiques déchirées

³On peut parfois les construire à la main [45].

⁴Cette formule corrige celle donnée dans la publication.

ou les feuilles des plantes. Ce système rappelle la disposition des domaines magnétiques au bord d'un ferromagnétique [39] ou des plis lors de la forte compression d'une plaque dans une glissière [50], où l'auto-similarité découle d'une compétition entre conditions aux limites et état préféré en volume. Dans le cas d'une plaque munie d'une métrique, la contrainte est distribuée en volume, et l'auto-similarité n'apparaît pas pour tout $g(y)$; d'ailleurs la caractérisation de ces fonctions $g(y)$ demeure ouverte.

Références : B. Audoly & A. Boudaoud. 'Ruban à godets' : an elastic model for ripples in plant leaves. *Comptes Rendus Mécanique* **330**, 831-836 (2002).

B. Audoly & A. Boudaoud. Self-similar structures near boundaries. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 096105 (2003).

2.4 Film mince sur substrat élastique

Nous rajoutons maintenant une dimension d'espace au flambage d'une couche de gel étudié ci-dessus. Le cas d'un film collé à un substrat élastique est pertinent pour les matériaux composites où le flambage est indésirable. Les études expérimentales se sont renouvelées avec la déposition de films métalliques sur des élastomères (Fig. 2.7a, [10]) : lors du refroidissement, la différence des coefficients de dilatation thermique induit des contraintes compressives isotropes dans le film. Différentes morphologies sont observées : le flambage rectiligne où le film ondule avec un seul vecteur d'onde, les crêtes formant des droites parallèles ; des motifs en chevron où les crêtes zigzaguent ; des motifs en forme de labyrinthe. Les deux derniers motifs sont encore mal compris [28]. Nous présentons ici une étude complète de la génération des chevrons.

Comme expliqué précédemment, le film est instable pour une compression de déformation ϵ dépassant un seuil ϵ_f d'ordre $C^{2/3}$ et la longueur d'onde λ_f de flambage est d'ordre $hC^{-1/3}$, $C = E_m/E_d$ étant le rapport entre le module élastique du substrat et celui du film. Dans la suite, les déformations et les longueurs d'onde (notations avec des barres) seront renormalisées par ϵ_f et λ_f . En distinguant les directions x et y , le film est soumis aux déformations renormalisées $(\bar{\epsilon}_{xx}^0, \bar{\epsilon}_{yy}^0)$ dans le plan initial du film (x, y) . L'énergie du système est la somme des énergies de flexion et de traction (en tenant compte des déformations imposées) du film et de l'énergie élastique du substrat (que l'on calcule en imposant comme condition aux limites des déplacements nuls parallèlement à la surface). Le film est instable si $\alpha = (\bar{\epsilon}_{xx}^0 + \nu \bar{\epsilon}_{yy}^0)/(1 + \nu) > 1$. Au delà du seuil, le déplacement $\xi_0 = h\sqrt{\alpha - 1} \cos(2\pi x/\lambda_f)$ est solution exacte des équations d'équilibre ; nous avons analysé sa stabilité vis-à-vis de perturbations de la forme

$$\xi(x, y) = \xi_0(x, y) + b \sin(2\pi x/\lambda_f) \cos(2\pi y/\lambda_z) + c \cos(2\pi x/\lambda_f) \cos(2\pi y/\lambda_v). \quad (2.11)$$

Le terme d'amplitude b correspond à des perturbations en zig-zag et celui d'amplitude c décrit des perturbations variqueuses. Nous trouvons le diagramme de stabilité de la figure. 2.7b. Si l'on augmente la compression au delà du seuil de flambage rectiligne, le système forme toujours des zig-zags en premier.

Nous passons maintenant au régime de forte compression. La traction du film devient coûteuse, ce qui impose une forme développable. Quelles sont alors les formes développables périodiques bornées ? Un cylindre de base une courbe périodique (comme le motif de flambage initial) répond à la question, mais il ne permet pas de relâcher les contraintes

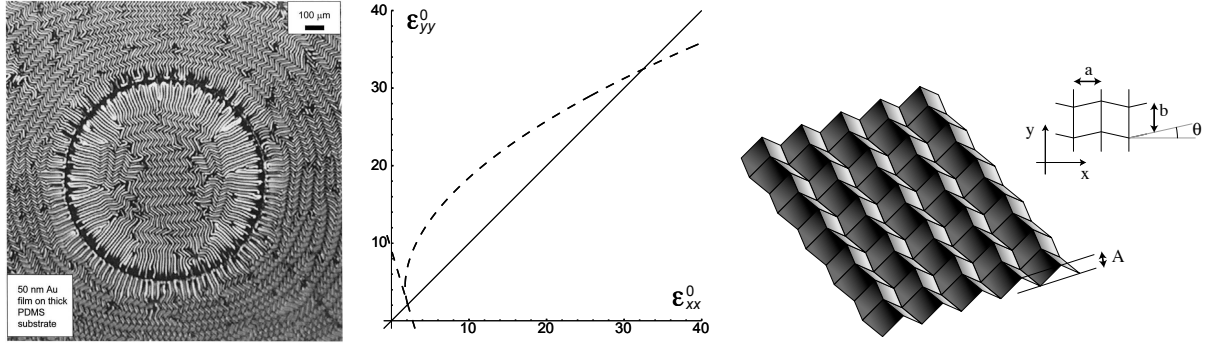


FIG. 2.7 – Flambage d'un film sur substrat élastique [10]. **a** Vue de dessus d'un film déposé sur un élastomère puis refroidi. **b** Diagramme de stabilité dans le plan des déformations renormalisées $(\epsilon_{xx}^0, \epsilon_{yy}^0)$ imposées au film pour un coefficient de Poisson $\nu = 0,3$ du film : le film plan est stable vis-à-vis d'un flambage dans la direction x à gauche de la droite en pointillés ; le motif rectiligne (ondulant dans la direction x) est instable vis-à-vis des zig-zags au dessus de la droite en pointillés et vis-à-vis du mode variatique au dessus de la courbe en pointillés. **c** Construction du motif à forte compression à l'aide d'un *Miura-ori*.

dans la direction des génératrices. Si l'on incline ce cylindre et on le replie en utilisant des symétries planes, on peut obtenir une surface développable formée de parties cylindriques raccordées par des plis courbes. Comme les plis courbes sont défavorisés énergétiquement par rapport aux plis rectilignes (Chapitre 1, section 1.2), nous proposons finalement la construction de la figure 2.7c, qui se trouve être le *Miura-ori*⁵ ; il s'agit d'un pavage de la feuille par des parallélogrammes (définis par l'angle θ et les longueurs a et b), plié avec une amplitude A . Un calcul géométrique montre que la compression est relâchée si

$$\epsilon_{xx}^0 = \frac{1}{2} \left(\frac{A \tan \theta}{b} \right)^2, \quad \epsilon_{yy}^0 = \frac{1}{2} \left(\frac{A}{b} \right)^2. \quad (2.12)$$

Nous en déduisons un résultat robuste, les zig-zags sont à angle droit ($\theta = \pi/4$) si la compression est isotrope. L'énergie du système est alors la somme de l'énergie des plis et de l'énergie du substrat – calculée à l'aide de transformées de Fourier. Mais lorsque nous minimisons cette énergie, nous trouvons que le rapport d'aspect a/b doit être infini. Plus précisément pour $a/b \ll 1$, le substrat oscille à la longueur d'onde b , son énergie par unité de surface est alors d'ordre $E_m b \epsilon$; les plis dominants ont une longueur a et un angle $A/b \sim \epsilon^{1/2}$, d'où une énergie d'ordre $E h^{8/3} \epsilon^{7/6} a^{1/3} / (ab)$ (nous divisons par la surface d'une cellule ab pour obtenir l'énergie par unité de surface) ; il est bien possible de faire tendre les deux énergies vers 0 en avec $b \rightarrow$ et $a^{2/3} b \rightarrow \infty$!

Pour comprendre la sélection de la taille des zig-zags à forte compression, nous avons construit un modèle simplifié dans le but d'une implémentation numérique efficace. Nous nous restreignons à la classe des déplacements $\xi(x, y) = f(x - g(y))$ — ce qui réduit notablement le nombre de degrés de liberté — et nous simplifions l'énergie de traction d'une manière comparable à celle utilisée pour les fronces auto-similaires. Si nous commençons les simulations numériques à forte compression, nous obtenons effectivement des zig-zags

⁵Ou pliage de Miura.

à grande échelle : a vaut la moitié de la taille du système. Par contre, si l'on augmente graduellement la compression à partir de zéro, le flambage rectiligne est suivi par des zig-zags quasi-sinusoïdaux de longueur d'onde d'ordre λ_f qui deviennent triangulaires avec $a \sim \lambda_f$. Le motif de Miura-ori décrit donc la forme du film à forte compression et sa longueur d'onde est sélectionnée par piégeage dans un minimum secondaire.

Référence : B. Audoly & A. Boudaoud. Herringbone patterns in thin films bound to compliant substrates. En préparation (2006).

Clôture

Nous avons étudié ici la morphogenèse dans les objets élastiques soumis à des gradients de contraintes mécaniques. Une plaque dont la longueur naturelle (la métrique) varie avec la distance au bord peut flamber en un motif sinusoïdal – notre expérience sur les bandes de gel, les bords de mollusques ou de certaines feuilles de plante – ou en un motif fractal – les feuilles plastiques déchirées ou d'autres feuilles de plante. Quelles sont les conditions exactes qui conduisent à l'un ou à l'autre type de motifs ? Une plaque comprimée et collée à un substrat élastique flambe ; si la longueur d'onde est petite, des points de rebroussement apparaissent et rappellent les formes des circonvolutions cérébrales ou des muqueuses, par exemple ; si la compression est forte, des motifs en chevrons se forment et la mesure de l'angle θ permet de caractériser l'état de contraintes du film. Dans une perspective biologique, il est à noter que, dans ce chapitre, nous n'avons pas considéré de couplage entre croissance et contraintes mécaniques. Nous reviendrons sur ce point dans la conclusion du mémoire.

Chapitre 3

Mouillage dynamique

« Après le mouillage, la manoeuvre terminée, tout marchait un peu à la diable, à bord [...]. »

Pierre Loti, *Matelot*.

Nous abandonnons (provisoirement) les films élastiques pour nous intéresser aux films fluides. Comment une goutte placée sur un substrat s'étale-t-elle ou se rétracte-t-elle ? Nous considérerons des liquides contenant un polymère en solution, des liquides volatils ou un substrat rugueux. Ici encore, une singularité apparaît – à la ligne de contact liquide/solide/vapeur – et des instabilités peuvent se produire pour un film en évaporation. Comment la régularisation de la singularité se manifeste-t-elle à grande échelle ? Quelles sont les formes engendrées lors de l'étalement, de la rétraction ou de l'évaporation ? Telles sont les questions que nous aborderons après avoir introduit les films minces et le mouillage dynamique. Pour des revues, on pourra consulter [6, 18, 36, 46, 49], par exemple.

3.1 Introduction à la théorie du mouillage dynamique

Considérons un film de liquide newtonien sur un substrat (Fig. 3.1), soumis à sa tension de surface γ et à des forces conservatives – gravité ou van der Waals, par exemple – de potentiel $\phi(x, y)$. S'il est mince et de petite pente (approximation de lubrification), la somme de la pression et du potentiel $\pi = p + \phi$ ne dépend pas de l'altitude z et est égale à sa valeur à la surface obtenue avec la loi de Young-Laplace, $p_0 - \gamma \partial^2 h / \partial x^2 + \phi(z = h)$, p_0 étant la pression du gas. Avec une condition de non-glissement sur le substrat, la vitesse moyenne $V(x) = \langle v(x, z) \rangle_z$ s'obtient à partir des équations de Stokes sous la forme¹

$$V = -\frac{h^2}{3\eta} \frac{\partial \pi}{\partial x} = -\frac{h^2}{3\eta} \frac{\partial}{\partial x} \left(-\gamma \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + \phi(x, z = h(x)) \right), \quad (3.1)$$

$h(x)$ est l'épaisseur du film. La conservation de la masse

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (hV) = 0 \quad (3.2)$$

¹Pour simplifier la présentation, nous considérons le système invariant dans la direction y ; toutes les équations peuvent être aisément généralisées quand il y a isotropie dans le plan (x, y) .

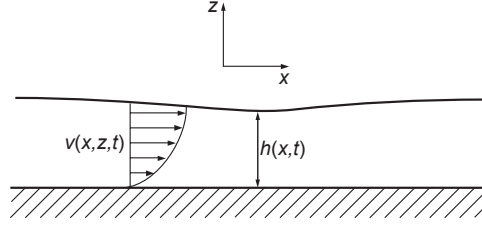


FIG. 3.1 – Ecoulement dans un film mince – définition des directions x et y de l'épaisseur du film h et de la vitesse horizontale v .

clos le problème. Dans le cas où seule les forces capillaires sont importantes², l'équation d'évolution – ou équation de lubrification – se réduit à

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\gamma}{3\eta} \frac{\partial}{\partial x} \left(h^3 \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} \right) = 0. \quad (3.3)$$

Nous considérons maintenant le mouvement d'une ligne de contact à la vitesse U dans la direction des x négatifs en prenant $h(x + Ut)$ comme fonction de $x + Ut$,

$$U + \frac{\gamma}{3\eta} h^2 \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} = 0. \quad (3.4)$$

Premier problème : cette équation n'a pas de solutions qui s'annulent. Si l'on s'intéresse aux solutions qui ont une pente finie pour $x \rightarrow +\infty$, la pente $\theta = h'$ – ou angle de contact dynamique – est donnée par

$$\theta^3(x) = 9 \mathcal{C} \ln \frac{x}{\ell} \quad \text{avec} \quad \mathcal{C} = \frac{\eta U}{\gamma}. \quad (3.5)$$

Cette équation est appelée loi de Cox-Voinov et relie l'angle macroscopique à la vitesse de la ligne de contact. \mathcal{C} est appelé nombre capillaire. La loi de Cox-Voinov pose d'autres problèmes qui ont suscité de nombreuses études. Quelle est la valeur de la longueur ℓ ? Elle dépend en fait de la physique microscopique : forces de van der Waals, glissement du liquide sur le substrat, interface diffuse... Quelle valeur de x doit-on prendre pour calculer l'angle de contact dynamique ? On consultera avec profit [24] pour une discussion de ces questions. Par ailleurs, le liquide peut mouiller ou ne pas mouiller le substrat. En général, on ajoute le cube de l'angle de contact d'équilibre θ_{eq}^3 au membre de droite de (3.5).

Si l'on choisit une longueur macroscopique $x = L$ dans la dépendance logarithmique de la loi de Cox-Voinov (3.5), on obtient une loi de mobilité $U = f(\theta, \theta_{\text{eq}})$ pour une ligne de contact. Considérons alors l'étalement d'une goutte mouillante. Comme le nombre capillaire est petit en général, les forces visqueuses ne sont importantes que près de la ligne de contact et la goutte a la forme d'une portion de sphère. Soit R le rayon de la projection de la goutte sur le substrat – appelé rayon de la goutte par la suite – et Ω son volume. La conservation du volume $\Omega = \pi/4 R^3 \theta$ combinée avec (3.5) donne la loi

²L'échelle caractéristique des variations d'épaisseur doit être petite devant la longueur capillaire $\ell_c = \sqrt{\rho g / \gamma}$. Ainsi la gravité g est négligeable.

d'évolution du rayon (loi de Tanner)

$$R \sim \Omega^{3/10} \left(\frac{\eta t}{\gamma} \right)^{1/10} \ln^{1/10} \frac{L}{\ell}. \quad (3.6)$$

Notons que l'équation de lubrification (à deux dimensions d'espace) admet des solutions auto-similaires³ qui redonnent la loi de puissance ci-dessus. Dans le cas de liquides rhéofluidifiants (voir ci-après), nous déterminerons également des solutions auto-similaires aux équations d'évolution.

Le facteur logarithmique de la loi de Cox-Voinov pourrâit sembler sans intérêt du point de vue des applications. Il permet en fait de sonder la physique microscopique cachée dans la valeur de ℓ . Ainsi, des expériences récentes [33] ont montré que les forces de van der Waals étaient pertinentes pour l'étalement d'huiles silicone. Comme nous le verrons ci-dessous, il est important pour les liquides non-newtoniens.

3.2 Liquides non-newtoniens

Comment une goutte de liquide non-newtonien s'étalet-elle ? Nous avons étudié deux cas modèle. Dans le premier, le liquide est rhéofluidifiant et la viscosité dépend du taux de cisaillement en loi de puissance

$$\eta = a \left(\frac{\partial v}{\partial x} \right)^{-\alpha}, \quad (3.7)$$

avec la géométrie de la figure 3.1. La viscosité est plus faible près de la ligne de contact car le cisaillement y est plus fort ; on s'attend alors à une accélération de l'étalement pour ce type de fluide.

Il est aisé d'obtenir l'équation de lubrification

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \nabla \cdot \left(\frac{1-\alpha}{3+2\alpha} \left(\frac{\gamma}{a} \nabla \cdot \nabla^2 h \right)^{\frac{1}{1-\alpha}} h^{\frac{3+2\alpha}{1-\alpha}} \right) = 0. \quad (3.8)$$

On peut en chercher des solutions auto-similaires (voir notre première publication pour des références)

$$h(r, t) = L \left(\frac{t}{\tau} \right)^{-2 \frac{1-\alpha}{10-3\alpha}} H \left(\frac{r}{\ell} \left(\frac{\tau}{t} \right)^{\frac{1-\alpha}{10-3\alpha}} \right), \quad (3.9)$$

d'où la loi d'évolution du rayon $R \sim t^n$, $n = (1-\alpha)/(10-3\alpha)$, qui se compare bien avec les expériences (Fig. 3.2a).

Nous avons résolu l'équation différentielle qui donne la forme $H(\zeta)$ de la goutte. Au contraire du cas de fluides newtoniens, cette équation possède des solutions qui s'annulent ; comme le liquide est mouillant, nous en choisissons les solutions de pente nulle à la ligne de contact (Fig. 3.2b). En utilisant le profil de la goutte, nous avons également calculé le préfacteur de la loi d'étalement, qui est en accord avec les expériences.

³En variables adimensionnées $h(r, t) = t^a H(r/t^b)$, r étant la distance au centre de la goutte.

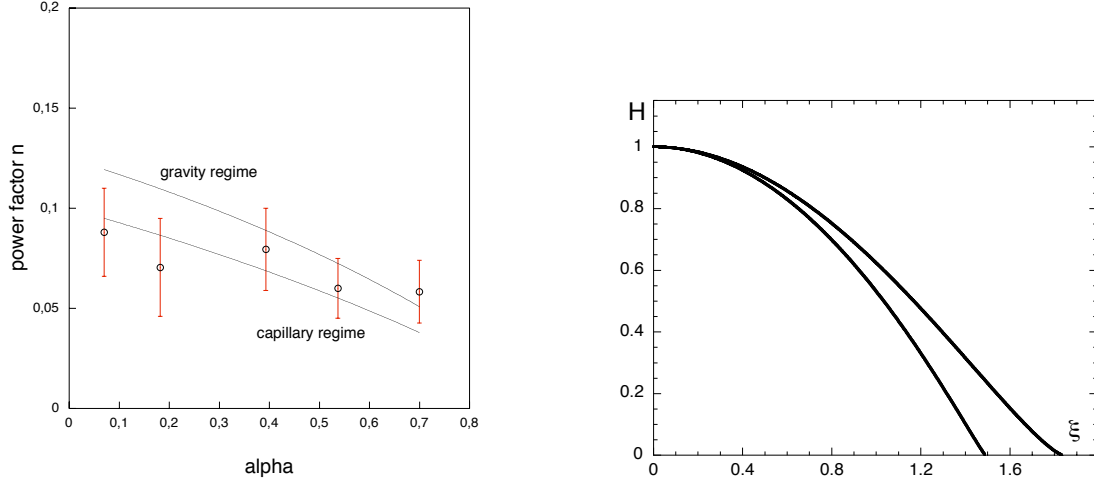


FIG. 3.2 – Étalement de gouttes de liquide rhéofluidifiant. **a** Exposants n d'étalement ($R \sim t^n$) en fonction de l'exposant rhéologique α : expérience (points), théorie capillaire (courbe inférieure), théorie gravitaire (courbe supérieure). **b** Formes théoriques pour des exposants rhéologiques $\alpha = 0,2$ (courbe inférieure) et $\alpha = 0,8$ (courbe supérieure).

Dans le second cas, la viscosité de cisaillement est constante, mais le liquide exhibe des contraintes normales à la direction de cisaillement [4],

$$\sigma_{xx} - \sigma_{zz} = \psi \left(\frac{\partial v}{\partial z} \right)^2. \quad (3.10)$$

ψ est le premier coefficient de contraintes normales. Pour des solutions diluées, la seconde différence de contraintes normales $\sigma_{yy} - \sigma_{zz}$ est négligeable et ψ est constant. Cette non-linéarité de la rhéologie rend le problème bien plus difficile que dans le cas de viscosités en loi de puissance. Ici encore, on s'attend à une accélération de l'étalement car les contraintes normales σ_{zz} , qui augmentent au voisinage de la ligne de contact, tendent à épaissir le film.

Le champ des vitesses se mettant sous la forme

$$v(x, z, t) = \sum_{n=0}^{\infty} a_n(x) z^n, \quad (3.11)$$

nous avons proposé de le tronquer à l'ordre 2. Cette troncature est exacte dans les deux limites de fortes contraintes normales et de faibles contraintes normales. Dans l'approximation de lubrification, nous aboutissons à deux équations couplées pour le taux de cisaillement $s(x, t)$ moyenné sur l'épaisseur et l'épaisseur $h(x, t)$,

$$2\eta s - h \frac{\partial}{\partial x} \left(\gamma \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} 4\psi s^2 \right) = 0, \quad (3.12)$$

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{2}{3} \frac{\partial}{\partial x} (h^2 s) = 0. \quad (3.13)$$

Nous cherchons alors le profil près d'une ligne de contact se déplaçant à la vitesse U vers les x négatifs, soit $h(x + Ut)$, où

$$1 + \frac{1}{3\mathcal{C}} h^2 h''' - 6\ell \frac{h'}{h} = 0. \quad (3.14)$$

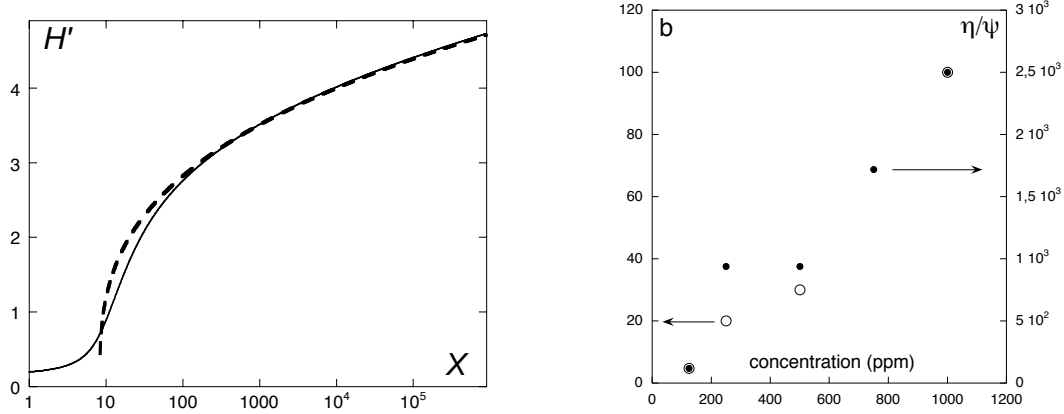


FIG. 3.3 – Étalement de gouttes de liquide avec contraintes normales. **a** Pente théorique H' en fonction de la distance à la ligne de contact X (variables sans dimension) : solution numérique de l'équation 3.14 (courbe continue) et ajustement à la loi de Cox-Voinov (pointillés). **b** Temps caractéristique $1/b$ de la dépendance logarithmique en temps du rayon de la goutte ($R \sim (t/\log(bt))^{1/10}$) et temps rhéologique ψ/η en fonction de la concentration en polymère de la solution.

Cette équation différentielle a une seule solution raccordant un préfilm en $x = \infty$ à une pente macroscopique finie en $x = +\infty$. Elle est représentée (adimensionnée) dans la figure 3.3a. La longueur « microscopique » de la loi de Cox-Voinov vaut

$$\ell = \frac{\psi U}{\eta}. \quad (3.15)$$

Si l'on applique la loi de Tanner (3.6) à la goutte, en prenant $L = R$, nous trouvons

$$R \sim \Omega^{3/10} \left(\frac{\eta t}{\gamma} \right)^{1/10} \ln^{-1/10} \frac{\eta t}{\psi}, \quad (3.16)$$

en accord avec les expériences (Fig. 3.3b). Ici la mesure macroscopique du rayon de la goutte révèle la rhéologie à grand cisaillement.

Dans les deux cas, l'étalement est plus lent que pour un liquide newtonien, au contraire de nos attentes *a priori*. En fait, le voisinage de la ligne de contact tend à avancer plus vite, ce qui diminue l'angle de contact macroscopique, ce qui diminue l'écart à l'équilibre, d'où une vitesse plus faible.

Références : S. Rafaï, D. Bonn & A. Boudaoud. Spreading of non-Newtonian fluids on hydrophilic surfaces. *J. Fluid Mech.* **513**, 77-85 (2004).

A. Boudaoud. Non-newtonian thin films with normal stresses : dynamics and spreading. Soumis à *Phys. Fluids*. (2006).

3.3 Liquides en évaporation

La seconde variation autour de l'étalement d'un liquide newtonien est la volatilité. Une goutte de liquide mouillant en évaporation s'étale puis se rétracte. Quelle est la vitesse de

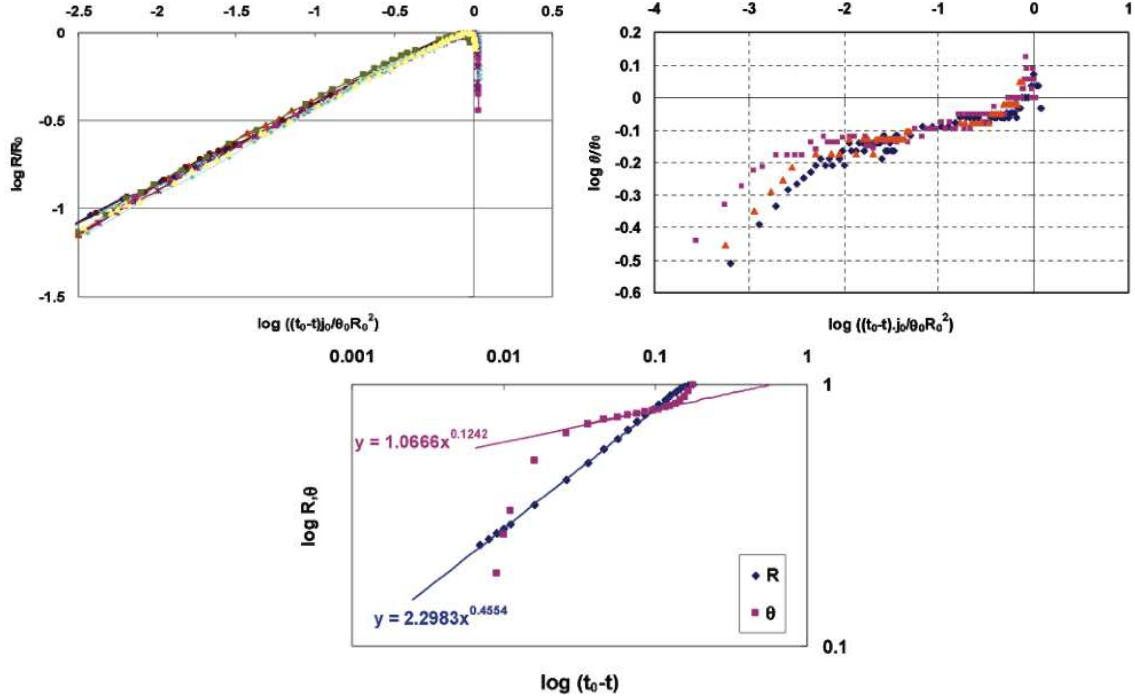


FIG. 3.4 – Evaporation de gouttes d’alcane. **a,b** Expériences avec l’heptane : **a** rayon R normalisé par le rayon maximal R_0 en fonction de temps réduit $(t_0 - t)j/\theta_0/R_0^2$, j étant le paramètre d’évaporation t_0 l’instant de disparition de la goutte et θ_0 l’angle de contact à l’extension maximale de la goutte ; **b** angle de contact θ normalisé par θ_0 en fonction du temps réduit $(t_0 - t)j/\theta_0/R_0^2$. **c** Prédictions pour R/R_0 et θ/θ_0 pour un nombre capillaire $\mathcal{C} = 0,16$.

rétractation ? Notre contribution à ce problème est modeste mais soulève d’autres questions. Le taux d’évaporation est donné par une transposition du champ électrostatique d’un conducteur en forme de disque à la diffusion quasi-statique⁴ de la vapeur en dehors d’une goutte de liquide [19] et l’équation de lubrification s’écrit

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{1}{3\eta} \nabla \cdot (h^3 \nabla (\gamma \nabla^2 h)) = - \frac{j}{R \sqrt{1 - (r/R)^2}}, \quad (3.17)$$

r étant la distance au centre de la goutte et R son rayon. Le paramètre d’évaporation j est proportionnel à la constante de diffusion de la vapeur dans l’air. Cette équation a des solutions auto-similaires qui donnent $R \sim t^{4/7}$ et $\theta \sim t^{-1/7}$ pour le rayon de la goutte et son angle de contact lors de la rétraction, en désaccord avec les observations expérimentales.

Soient R_0 et θ_0 les valeurs de ces grandeurs à l’extension maximale de la goutte. L’épaisseur caractéristique de la goutte est $R_0 \theta_0$ et le temps caractéristique de son évolution $\theta_0 R_0^2/j$. L’utilisation de ces grandeurs caractéristiques permet de superposer les évolutions temporelles des rayons et des angles de contact de différentes gouttes sur des

⁴Nous faisons cette approximation car toutes les longueurs sont petites devant la longueur de diffusion D/v , qui est le rapport entre la diffusivité D et la vitesse caractéristique de la ligne de contact.

courbes universelles (Fig. 3.4a,b). Pour comprendre l'évolution, nous proposons une généralisation de la loi de Cox-Voinov, en partant de l'idée que le taux d'évaporation ne diverge pas à la périphérie de la goutte, mais sature à une longueur microscopique ℓ . En évaluant les termes de l'équation 3.17 à une distance ℓ de la ligne de contact et en oubliant les préfacteurs numériques et logarithmique, la loi de mobilité s'écrit

$$\mathcal{C} = \theta^3 - \frac{1}{\theta\sqrt{\ell R}}. \quad (3.18)$$

L'intégration de (3.17) sur toute la goutte donne par ailleurs l'évolution temporelle du volume $\Omega = \pi/4 R^3\theta$,

$$\frac{d\Omega}{dt} = -2\pi j R. \quad (3.19)$$

En prenant pour $\ell = a/\theta^2$ la taille du préfilm dans la théorie de l'étalement avec forces de van der Waals [18], a étant une taille moléculaire, et en intégrant les équations différentielles (3.18-3.19) nous obtenons des courbes comme celles de la figure 3.4c. Elles sont qualitativement semblables aux observations expérimentales et montrent les mêmes exposants apparents d'évolution temporelle. Toutefois une conséquence de cette loi de Cox-Voinov généralisée est que $\theta_0 \sim R_0^{-1/6}$ à l'extension maximale, dépendance bien plus faible que celle $\theta_0 \sim R_0^{-0.45}$ observée expérimentalement. D'autres façons de régulariser la divergence du taux d'évaporation ne permettent pas de surmonter cette contradiction. Quelle est alors la bonne physique près de la ligne de contact ?

Référence : C. Poulard, G. Guéna, A.-M. Cazabat, A. Boudaoud & M. Ben Amar. Rescaling the dynamics of evaporating drops. *Langmuir* **21**, 8226-8233 (2005).

3.4 Instabilités lors de l'évaporation

Lors de la rétraction de gouttes en évaporation, la ligne de contact se met parfois à onduler (Fig. 3.5a, [51]). Par ailleurs, lors de l'évaporation de films nanométriques d'eau, des zones où le film est plus mince apparaissent et la limite entre les deux épaisseurs de film ondule (Fig. 3.5b, [25]). Le modèle existant [11] prédit qu'un film en évaporation est toujours instable, en contradiction avec les observations sur les gouttes où l'instabilité n'est pas toujours présente. Ce modèle ne considère pas la phase gazeuse, alors que l'évaporation est souvent limitée par la diffusion de la vapeur dans l'air [19].

L'évaporation a deux effets principaux : elle prend de la chaleur au liquide, ce qui peut entraîner des gradients de température T et par conséquent des gradients de tension de surface (effet Marangoni : la tension de surface γ est fonction de la température) ; une molécule qui change de phase gagne de la quantité de mouvement, ce qui imprime une force de recul à l'interface proportionnelle au carré du flux massique d'évaporation J . L'équation de lubrification se met sous la forme

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \frac{h^3}{3\mu} \frac{\partial}{\partial x} \left[\gamma \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} + \phi(z=h) + \frac{J^2}{\rho_v} \right] + \frac{h^2}{2\mu} \left| \frac{d\gamma}{dT} \right| \frac{\mathcal{L}_v}{\kappa} \frac{\partial}{\partial x} (hJ) \right\} = -\frac{J}{\rho_\ell}. \quad (3.20)$$

ρ_v et ρ_ℓ sont les masses volumiques de la vapeur et du liquide, respectivement. Le premier terme dans l'accolade est la pression capillaire, le deuxième le potentiel des forces conservatives, le troisième la force de recul due à l'évaporation (négligeable si l'évaporation

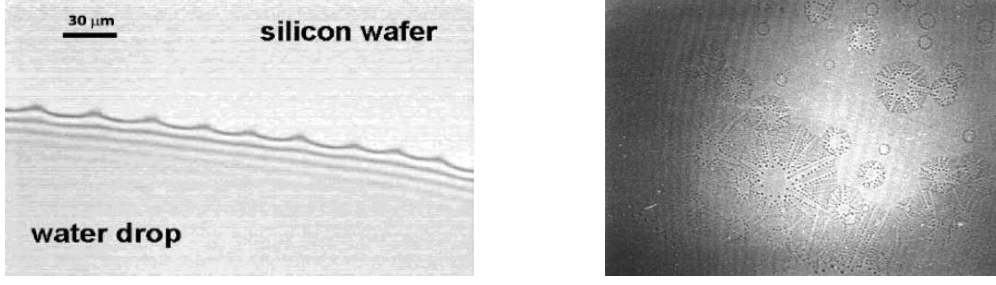


FIG. 3.5 – Deux motivations pour l’étude de la stabilité d’une couche mince de liquide en évaporation. **a** Ondulations de la ligne de contact d’une goutte d’eau en évaporation [51]. **b** Nucléation d’un film mince lors de l’évaporation de films nanométriques d’eau et ondulations de la ligne de raccord entre le film épais et le film mince [25].

est lente) et le dernier provient de l’effet Marangoni. \mathcal{L}_v est la chaleur latente massique d’évaporation et κ la conductivité thermique du liquide.

Si la dynamique est lente, la diffusion de la vapeur est décrite par l’équation de Laplace

$$\nabla^2 \rho = 0. \quad (3.21)$$

Il reste à donner les conditions aux limites. La phase gazeuse n’est pas à l’équilibre, ce que l’on impose par un flux constant loin du film

$$\frac{\partial \rho}{\partial z} = -\frac{J_0}{D}, \quad z \rightarrow +\infty. \quad (3.22)$$

La condition à l’interface relie le flux de diffusion de vapeur dans la phase gaz au taux de transfert à travers l’interface, imposé par l’écart local de la densité en vapeur ρ_{int} à sa valeur à l’équilibre thermodynamique $\rho_v^{\text{eq}}(T_{\text{int}})$.

$$J = -D(\nabla \cdot \mathbf{n})\rho = v_{\text{th}}(\rho_v^{\text{eq}}(T_{\text{int}}) - \rho_{\text{int}}). \quad (3.23)$$

D est le coefficient de diffusion de la vapeur et v_{th} une vitesse thermique caractéristique. Comme la température à l’interface est variable, il reste à exprimer

$$\rho_v^{\text{eq}}(T_{\text{int}}) = \rho_v^{\text{eq}}(T_{\text{subs}}) - \frac{d\rho_{\text{eq}}}{dT} \frac{\mathcal{L}_v}{\kappa} hJ, \quad (3.24)$$

T_{subs} étant la température du substrat.

Dans la plupart des conditions expérimentales, l’évaporation est limitée par la diffusion et la condition (3.23) se réduit à

$$J = -D(\nabla \cdot \mathbf{n})\rho, \quad \rho_{\text{int}} = \rho_v^{\text{eq}}(T_{\text{subs}}). \quad (3.25)$$

Notons que dans ce cadre là, l’analogie électrostatique montre directement que l’évaporation est stabilisante par effet de pointe : la densité de vapeur (le potentiel électrique) est constante sur la surface donc le flux de vapeur (champ électrique) est plus grand au dessus d’une bosse. L’équation de Laplace munie de cette condition aux limites peut

se résoudre perturbativement. Pour fermer l'équation de lubrification (3.20), il suffit de calculer le flux d'évaporation,

$$\begin{aligned}
\frac{J[h]}{J_0} = & 1 - \frac{d}{dx} \mathcal{H}[h] + \left\{ \frac{1}{2} \left(\frac{dh}{dx} \right)^2 + \frac{d^2 h}{dx^2} h + \frac{d}{dx} \mathcal{H} \left(h \frac{d}{dx} \mathcal{H}[h] \right) \right\} \\
& + \left\{ \frac{1}{2} \left(\frac{dh}{dx} \right)^2 \mathcal{H} \left[\frac{dh}{dx} \right] - \frac{1}{2} \frac{d^2}{dx^2} \left(h^2 \frac{d}{dx} \mathcal{H}[h] \right) - 2h \frac{dh}{dx} \mathcal{H} \left[\frac{d^2 h}{dx^2} \right] \right. \\
& \quad \left. - \frac{d}{dx} \mathcal{H} \left(h \frac{d}{dx} \mathcal{H} \left(h \frac{d}{dx} \mathcal{H}[h] \right) \right) - \frac{1}{2} \frac{d}{dx} \mathcal{H} \left[h^2 \frac{d^2 h}{dx^2} \right] \right\} \\
& + O(h^4).
\end{aligned} \tag{3.26}$$

\mathcal{H} est la transformée de Hilbert définie par

$$\mathcal{H}[f](x) = \frac{1}{\pi} \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} \int_{|x-x'| > \varepsilon} dx' \frac{f(x')}{x' - x}. \tag{3.27}$$

Cette expression du taux d'évaporation nous sera également utile pour un problème très différent traité dans la section suivante.

Nous avons étudié la stabilité linéaire d'un film d'épaisseur constante. Pour les films nanométriques de liquide polaire, l'effet Marangoni est négligeable et la déstabilisation provient de la forme non monotone du potentiel ϕ . Un film ayant une épaisseur pour laquelle ϕ est décroissant est instable si l'évaporation n'est pas assez intense. Avec les paramètres expérimentaux de [25], les longueurs d'onde les plus instables sont de l'ordre de 10 μm , du même ordre de grandeur que dans les expériences.

Pour des films macroscopiques, l'effet Marangoni est moteur d'instabilité si le film est assez épais. Une comparaison avec les expériences sur des gouttes [51] est plus délicate car la géométrie est différente. En effet, avec les paramètres expérimentaux nous trouvons que les films sont toujours stables. Par contre le classement des liquides du plus stable au moins stable correspond au classement expérimental. Les longueurs d'onde théoriques sont un ordre de grandeur plus grande que les longueurs d'onde expérimentales. Il semble que nous avons identifié les bons ingrédients physiques – une compétition entre une instabilité de Marangoni et une stabilisation par l'évaporation – mais il faudrait confirmer ce scénario en considérant une géométrie plus proche du voisinage d'une ligne de contact.

Dans les deux cas, nous avons également déterminé l'équation d'amplitude qui décrit la dynamique du système près du seuil de l'instabilité. Elle montre que les deux transitions sont continues. Par ailleurs, elle a la propriété inhabituelle d'être non-locale – elle contient des transformées de Hilbert. La non-localité modifie les instabilités secondaires et pourrait avoir d'autres conséquences.

Références : E. Sultan, A. Boudaoud & M. Ben Amar. Diffusion-limited evaporation of thin polar liquid films. *J. Eng. Math* **50**, 209–222 (2004).

E. Sultan, A. Boudaoud & M. Ben Amar. Evaporation of a thin film : Diffusion of the vapour and Marangoni instabilities. *J. Fluid Mech.* **543**, 183–202 (2005).

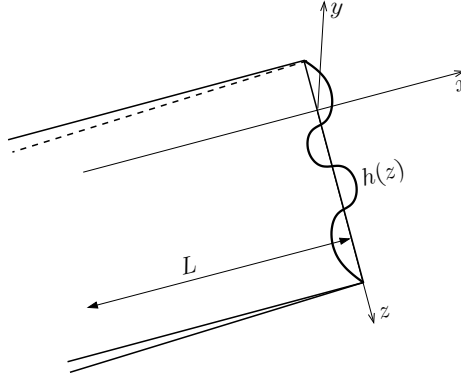


FIG. 3.6 – Géométrie pour une ligne de contact avançant sur une substrat hétérogène. La ligne reste dans le plan $y = 0$; sa forme est définie par la fonction $h(z)$ et L représente sa position macroscopique.

3.5 Rugosité d'une ligne de contact mobile

Notre contribution à l'étude de la rugosité d'une ligne de contact se déplaçant sur un substrat hétérogène provient de la conjonction entre le calcul du taux d'évaporation de la section précédente et l'utilisation d'une nouvelle méthode analytique donnant la rugosité d'une fracture se propageant dans un plan faible [32]. En effet, le calcul non-linéaire du taux d'évaporation est quasiment identique au calcul non-linéaire de l'angle de contact, alors que l'équation du mouvement de la ligne de contact est la même — aux préfacteurs près — que celle du front de fracture.

Considérons un film mince de liquide limité par une ligne de contact de forme prescrite $h(z)$ (Fig. 3.6). Nous voulons déterminer l'angle de contact $\theta(z)$ pour écrire une équation du mouvement de la ligne. Si seules les forces capillaires sont importantes⁵ alors l'épaisseur du film $Y(x, z)$ est déterminée par

$$\begin{cases} \nabla^2 Y = 0 & (x < h(z)) \\ Y(x = h(z), z) = 0 \\ \frac{\partial Y}{\partial x}(x = -\infty, z) = -\theta_0, \end{cases} \quad (3.28)$$

θ_0 étant la pente loin de la ligne de contact. Ce problème a exactement la même formulation (à la transformation $h \mapsto -h$ près) que pour le taux d'évaporation quand la diffusion est limitante. La différence entre les deux est cachée dans le fait que la position moyenne $x = L$ de la ligne de contact est fixée à grande échelle par le dispositif expérimental, ce qui n'est pas pris en compte dans la formulation ci-dessus. Par conséquent, en transposant le résultat pour le flux d'évaporation, il faut supprimer tous les termes dépendant explicitement de h . Nous obtenons alors

$$\frac{\theta[h]}{\theta_0} = 1 + \mathcal{H}[h'] + \frac{1}{2}h'^2 + \mathcal{H}[h'\mathcal{H}[h']] + \frac{1}{2}h'^2\mathcal{H}[h'] + \mathcal{H}[h'\mathcal{H}[h'\mathcal{H}[h']]] + \mathcal{O}(h'^4, h/L). \quad (3.29)$$

⁵A des échelles petites devant la longueur capillaire et grandes devant les longueurs moléculaires.

En supposant le nombre capillaire petit, la vitesse normale de la ligne de contact est donné par la linéarisation de la loi de la mobilité, $v_n = U^*(\theta - \theta_{\text{eq}})$, soit en tenant compte de la projection sur la direction x ,

$$\frac{\partial h}{\partial t} = U^* \sqrt{1 + h'^2} (\theta[h] - \theta_{\text{eq}}). \quad (3.30)$$

L'hétérogénéité du substrat se manifeste dans l'angle d'équilibre, qui est la somme d'une partie constante et d'une partie fluctuante $\theta_{\text{eq}} = \theta_{\text{eq}}^* + \eta(z, h)$. Nous supposons que les fluctuations de vitesse sont petites devant la vitesse moyenne de la ligne ce qui conduit à l'approximation de bruit « thermique » $\eta(z, h) \simeq \eta(z, vt) = \hat{\eta}(z, t)$,

$$\theta_{\text{eq}} = \theta_{\text{eq}}^* + \hat{\eta}(z, t), \quad \langle \hat{\eta}(z, t) \hat{\eta}(z', t') \rangle = 2D \delta(z - z') \delta(t - t'). \quad (3.31)$$

Les équations (3.29-3.31) déterminent complètement le mouvement de la ligne. Aux coefficients numériques près, elles ont la même forme (jusqu'à l'ordre 2) que pour la propagation d'une fracture [32].

Pour caractériser la rugosité de la ligne, on utilise les fonctions de corrélations

$$\left\langle [h(x, t) - h(x', t')]^2 \right\rangle^{1/2} = |x - x'|^{2\alpha} f\left(\frac{|x - x'|}{|t - t'|^z}\right). \quad (3.32)$$

α est l'exposant de rugosité et z l'exposant dynamique. La méthode utilisée construit un développement auto-cohérent des solutions de l'équation de Fokker-Plank associée à l'équation du mouvement (écrite en modes de Fourier). Il en résulte deux phases possibles : une phase lisse avec $\alpha = 0$ et $z = 1$ et une phase rugueuse avec $\alpha = 1/2$ et $z = 2$. L'exposant $\alpha = 1/2$ est en accord avec les expériences à faibles vitesses moyennes [44] pour lesquelles l'approximation de bruit thermique ne semble pas strictement valable. Toutefois, dans les expériences, le mouvement de la ligne se fait essentiellement par des avalanches rapides pour lesquelles notre approximation est pertinente. La ligne de contact mobile fait ainsi partie de la même classe d'universalité que la fracture se propageant dans un plan faible.

Référence : E. Katzav, M. Adda-Bedia, M. Ben Amar & A. Boudaoud. Roughness of moving elastic lines in heterogeneous media : wetting and fracture. En préparation (2006).

Clôture

Ici, nous avons caractérisé l'étalement de gouttes de liquides non-newtoniens et l'évaporation de gouttes de liquide newtonien, en montrant comment la physique du voisinage de la ligne se manifeste à grande échelle. Nous avons étudié la déstabilisation de films en évaporation par des gradients de tension de surface ou par des forces électrostatiques à petite échelle. Enfin, nous avons exhibé une phase rugueuse pour le mouvement d'une ligne de contact sur un substrat hétérogène. Nos résultats théoriques appellent de nouvelles expériences sur l'évaporation de films d'épaisseur constante et le mouvement de lignes de contact à plus hautes vitesses.

Chapitre 4

Auto-organisation

« Quand j'entre dans l'œuvre de Grandville, j'éprouve un certain malaise, comme dans un appartement où le désordre serait systématiquement organisé [...]. »

Charles Baudelaire, *Curiosités esthétiques*.

Après avoir étudié des films liquides, nous passons à la dynamique de films d'air. Lors qu'une goutte de liquide est déposée sur un bain du même liquide, le film d'air qui les sépare s'amincit jusqu'à sa rupture qui conduit à la coalescence de la goutte avec le bain. Nous verrons que la coalescence peut être inhibée en imposant une vibration au bain, ce qui entretient le film d'air. Les gouttes rebondissantes ainsi obtenues peuvent générer des ondes de surface et interagir entre elles. Cette interaction conduit à l'existence des principaux types d'auto-organisation connus pour les états localisés, faisant de ce système un modèle de physique non-linéaire. Ensuite, nous revenons aux tiges élastiques et à la coalescence. Deux tiges extraites d'un bain peuvent coalescer sous l'effet des forces capillaires. Combien y a-t-il de cheveux dans une touffe mouillée ? Pour répondre à cette question, nous serons amenés à utiliser les concepts des processus d'aggrégation. Pour des revues sur ces différents sujets, et sur d'autres reliés, on pourra consulter [15, 17, 23, 37, 43, 58, 61].

4.1 Gouttes rebondissantes

Pour commencer, si l'on dépose une goutte sur un bain du même liquide mis en vibration, la coalescence peut être inhibée. La goutte peut alors rebondir « indéfiniment » sur le substrat (Fig. 4.1a). Nous étudions d'abord la condition de rebond de la goutte.

Nous considérons que l'air n'entraîne pas le liquide car sa viscosité μ_a est petite devant celle du liquide μ (nous y reviendrons plus tard). A un instant donné, le film d'air a une épaisseur h et un rayon r_F . A l'atterrissage, l'air résiste à l'écrasement si le nombre de Reynolds est assez petit, $Re = \rho_a h^2 \omega / \mu_a < Re_c$, ρ_a étant la masse volumique de l'air et ω la pulsation de la vibration (et du rebondissement). La théorie de lubrification indique que la force de résistance à l'écrasement ou au décolage est proportionnelle à $F \sim \mu_a r_F^4 \omega / h^2$. Au décolage, l'accélération du bain γ_m doit compenser la gravité g et la force de succion,

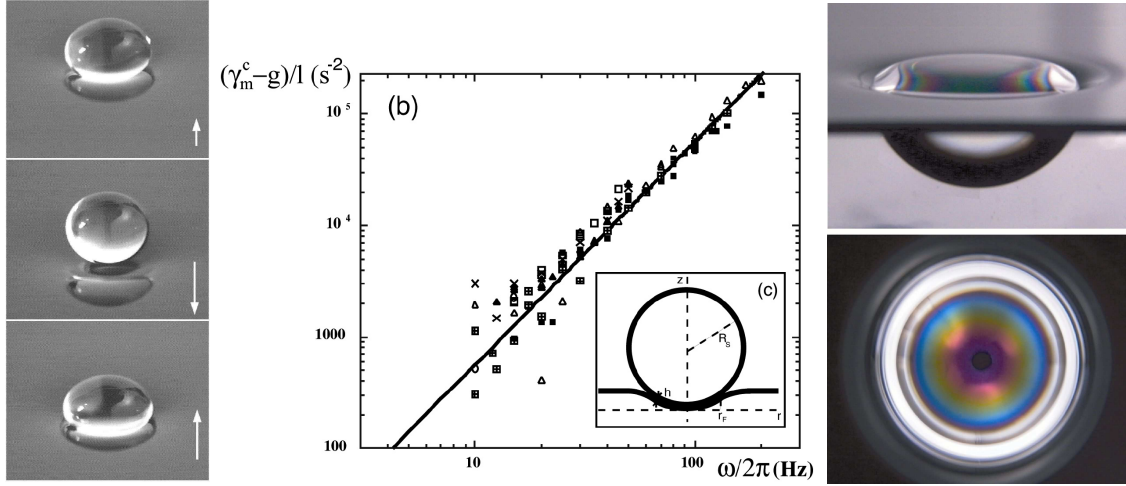


FIG. 4.1 – Inhibition de la coalescence d’une goutte avec un bain du même liquide. **a, b, c** Le bain est soumis à une vibration sinusoïdale d’accélération γ_m ; une goutte de 2 mm de rayon rebondit à la surface. **d** Le seuil de rebond réduit $(\gamma_m^c - g)/\ell$ en fonction de la fréquence de vibration $\omega/2\pi$; g est l’accélération de la gravité et ℓ une longueur construite à partir de la dynamique du film d’air entre la goutte et le bain. **e, f** Une goutte de 2 cm de diamètre survit une demi-heure avec ou sans vibrations.

d’où une expression du seuil

$$\gamma_m^c - g = \frac{1}{\text{Re}_c} \frac{\rho_a}{\rho} \ell \omega^2, \quad \ell = \frac{r_F^4}{R^3}, \quad (4.1)$$

ρ étant la masse volumique du liquide et R le rayon de la goutte. Pour déterminer le rayon caractéristique du film r_F , nous considérons l’équilibre d’une goutte de tension de surface γ placée sur un bain du même liquide, avec une tension de surface 2γ correspondant aux deux faces du film, et soumise à une accélération $g - \gamma_L$, γ_L étant l’accélération du bain à l’atterrissage. L’échelle ℓ ainsi obtenue permet de mettre sur une même courbe toutes les mesures de seuil de rebond, et la dépendance en ω^2 est bien observée expérimentalement (Fig. 4.1b). Une fois qu’elle rebondit, il est possible d’injecter avec une seringue du liquide dans la goutte et la faire grossir jusqu’à une taille centimétrique (Fig. 4.1c) ; elle arrête alors de rebondir et le film d’air s’amincit lentement jusqu’à sa rupture. Les solutions auto-similaires de l’équation de lubrification correspondent aux observations expérimentales : l’épaisseur du film est approximativement constante et l’épaisseur du film décroît en inverse du carré du temps.

Revenons aux conditions d’inhibition de la coalescence. Le film d’air ne devant pas entraîner le liquide, les contraintes de cisaillement $\mu_a U/h$ pour un écoulement à vitesse U dans le film doivent être plus petites que les contraintes $\mu U/R$ dans la goutte. La goutte adapte sa forme lors du rebond si son temps de relaxation visqueuse $\mu R/\gamma$ est petit devant la période de vibration $1/\omega$. Ces deux conditions donnent un intervalle de viscosités du liquide $\mu_a R/h \sim 10 \text{ Pa.s} < \mu < \gamma/(\omega R) \sim 1 \text{ Pa.s}$ pour des gouttes millimétriques, en accord avec les observations expérimentales.

Si l’on augmente l’amplitude de vibration au delà d’un seuil bien défini, des ondes apparaissent spontanément sur le bain – c’est l’instabilité de Faraday [22], où le forçage

paramétrique à la pulsation ω excite des ondes capillaro-gravitaires de pulsation $\omega/2$. Plaçons une goutte millimétrique sur la surface et augmentons graduellement l'amplitude du forçage au dessus du seuil de rebond. A partir d'un certain seuil, la goutte excite des ondes circulaires de faible amplitude à la pulsation ω ; dans ce régime, des gouttes rebondissantes identiques s'organisent en un réseau triangulaire de pas donné par la longueur d'onde. A partir d'un second seuil, les gouttes subissent une transition de doublage de fréquence : un saut de durée plus longue alterne avec un saut court, jusqu'à ce que le saut court disparaisse et que la goutte vienne en contact avec la surface toutes les deux périodes $4\pi/\omega$. A ce moment-là, on est légèrement sous le seuil de l'instabilité de Faraday et la goutte est efficace pour exciter des ondes de Faraday à la pulsation $\omega/2$. Un tel système d'ondes est visible sur la figure 4.2a. Dans ce régime, les gouttes acquièrent un mouvement horizontal et ont des interactions non-triviales entre elles. Notons toutefois que d'autres régimes sont observés : transition vers le chaos par doublage de fréquence et intermittence.

Commençons par expliquer le mouvement horizontal. A chaque rebond sur une surface inclinée, il y a transfert de quantité de mouvement dans la direction horizontale. D'autre part lors d'un rebond incliné, le cisaillement du film d'air ralentit le mouvement horizontal. L'équation du mouvement horizontal $x(t)$ moyennée sur un saut se met alors sous la forme

$$m \frac{d^2x}{dt^2} = F^b \sin \left(\frac{2\pi}{V_\varphi} \frac{dx}{dt} \right) - f^v \frac{dx}{dt}. \quad (4.2)$$

L'amplitude de la force motrice F^b est donnée par la projection de l'inertie verticale $m\gamma_m$ de la goutte sur la pente de la surface $A_F/\lambda_F \sin(2\pi V/V_\varphi)$, A_F et λ_F étant l'amplitude et la longueur d'onde du système d'onde excité, et $2\pi V/V_\varphi$ le déphasage au saut suivant de la goutte par rapport à son onde si elle avance à la vitesse V , V_φ étant la vitesse de phase. Le coefficient de résistance visqueuse f^v est proportionnel au rapport $\mu_a r_F/h$ caractérisant le film de rayon r_F et d'épaisseur h . Cette équation du mouvement prédit une bifurcation continue vers la marche quand $F^b > f^v V_\varphi/2\pi$. Le comportement de la vitesse en racine de $\gamma_m - \gamma_m^c$ est en accord avec les observation pour les petites gouttes (Fig. 4.2b). Par contre, nous n'avons pas d'explication satisfaisante pour l'hystérésis observé pour les grosses gouttes.

L'équation du mouvement se généralise aisément à deux dimensions. En présence d'une autre goutte en \mathbf{r}' , il faut y rajouter un terme donné par la pente des ondes qu'elle émet¹,

$$\begin{aligned} m \frac{d^2 \mathbf{r}}{dt^2} &= F^b \sin \left(\frac{2\pi}{V_\varphi} \left| \frac{d\mathbf{r}}{dt} \right| \right) \frac{d\mathbf{r}/dt}{|d\mathbf{r}/dt|} - f^v \frac{d\mathbf{r}}{dt} \\ &+ F'^b \exp \left(-\frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}{\lambda_A} \right) \sqrt{\frac{\lambda_F}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}} \sin \left(2\pi \frac{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|}{\lambda_F} \right), \end{aligned} \quad (4.3)$$

λ_A étant la longueur d'amortissement des ondes de Faraday. L'intégration numérique des équation du mouvement donne des trajectoires très similaires aux trajectoires expérimentales (Fig. 4.2c). Un choc entre deux gouttes identiques est attractif ou répulsif selon

¹Ce terme corrige celui de la publication, erroné quant à la dépendance radiale de l'amplitude d'ondes circulaires.

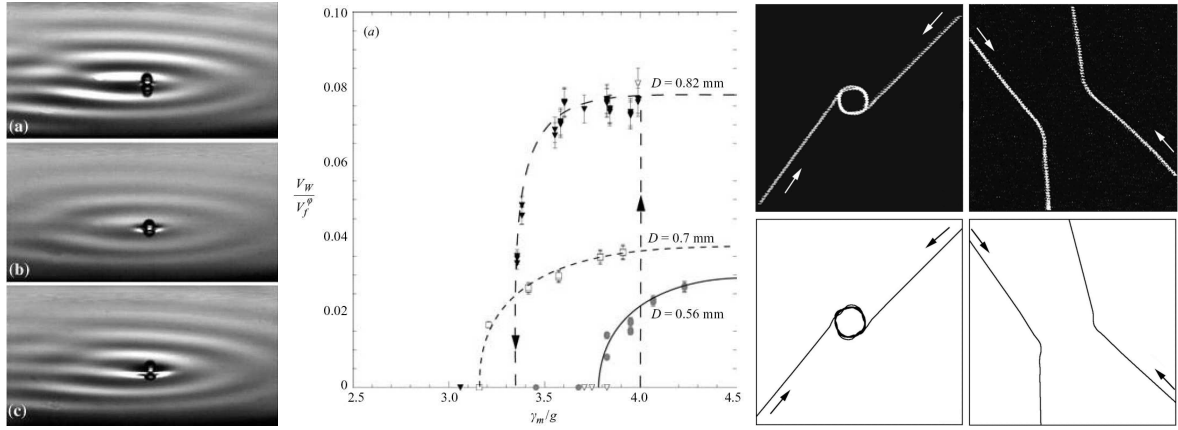


FIG. 4.2 – Les gouttes deviennent des marcheurs près du seuil de l’instabilité de Faraday – elles ont un mouvement de translation rectiligne à une vitesse de quelques mm/s. **a, b, c** Goutte de 0,75 mm de diamètre en translation vers la droite et le système d’ondes associé. **d** Vitesse V_w de gouttes de différents diamètres D , adimensionnée par la vitesse de phase V_φ des ondes de surface à la fréquence double du forçage, en fonction de l’amplitude du forçage γ_m/g . **e, f** Superposition de photographies expérimentales vues de dessus : collision entre deux gouttes identiques (l’orbite a un diamètre de 6 mm). **g, h** Trajectoires théoriques dans les mêmes conditions.

le paramètre d’impact. Un choc attractif conduit à des orbites de diamètre quantifié : le décalage entre deux orbites successives vaut approximativement λ_F , comme on le retrouve en déterminant les solutions circulaires des équations du mouvement. Ainsi, nous obtenons l’équivalent d’états localisés (voir [15]) qui interagissent par les ondes associées. Plusieurs questions restent en suspens : l’existence d’un seuil supérieur de forçage pour le rebond, le seuil d’émission d’ondes de Faraday par des gouttes, l’hystérésis dans la transition vers la marche pour les grosses gouttes...

Références : Y. Couder, S. Protière, E. Fort & A. Boudaoud. Walking and orbiting droplets. *Nature* **437**, 208 (2005).

S. Protière, Y. Couder, E. Fort & A. Boudaoud. The self-organisation of surface waves sources. *J. Phys. Cond. Mat* **17**, S3529-S3535 (2005).

S. Protière, A. Boudaoud & Y. Couder. Particle-wave association on a fluid interface. *J. Fluid. Mech.* **554**, 85-108 (2006).

4.2 Auto-assemblage capillaire de tiges

Pour comprendre l’auto-assemblage capillaire de tiges – des cheveux mouillés – en touffes, nous avons commencé par une géométrie à deux dimensions. Des lamelles de rigidité de flexion B sont assemblées avec une séparation constante d et plongées dans un liquide mouillant de tension de surface γ , puis la brosse qu’elles constituent est progressivement retirée du liquide, le paramètre de contrôle étant la hauteur L extraite. Au début, des lamelles voisines coalescent pour former des groupes de deux. Le processus d’aggrégation continue lorsque la hauteur L est augmentée. A chaque étape, deux touffes

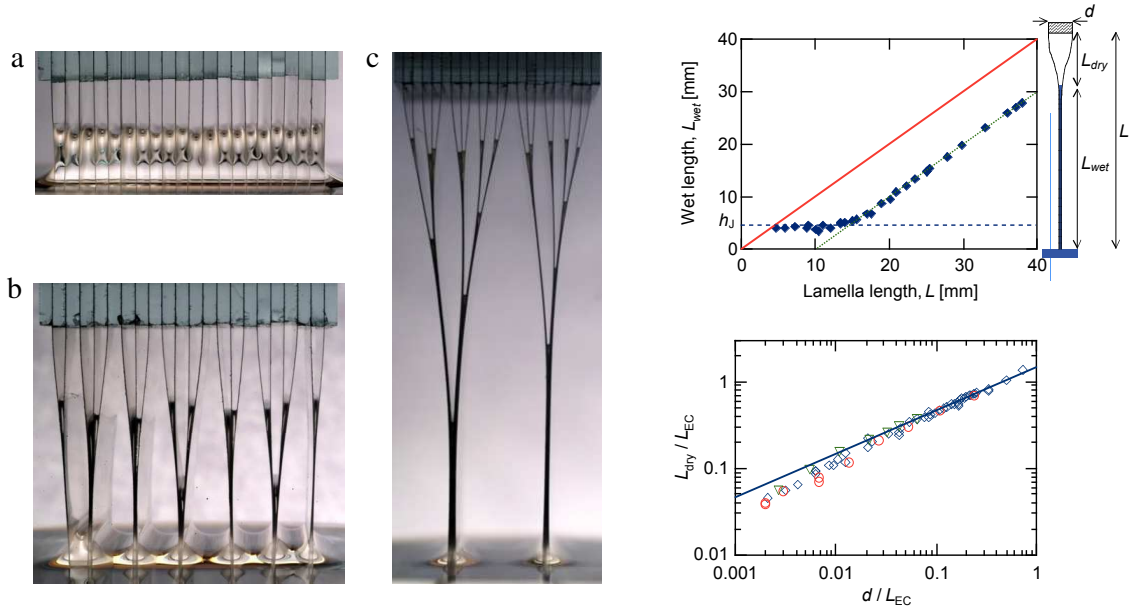


FIG. 4.3 – Aggrégation capillaire de lamelles. **a, b, c** Photographies à différentes hauteurs L d'extraction. L'histoire du processus d'aggrégation se lit sur la dernière photographie. **d** Hauteur d'ascension du liquide L_{wet} en fonction de la longueur d'extraction L . Transition entre régime d'ascension capillaire ($L_{\text{wet}} = h_J$) et régime de collage ($L_{\text{dry}} = L - L_{\text{wet}}$ constant). **e** Régime de collage : longueur sèche L_{dry} en fonction de la séparation entre lamelles d (l'unité de longueur est la longueur élastocapillaire L_{EC}) et comparaison avec la théorie (ligne) sans paramètre ajustable.

coalescent pour donner une touffe plus grosse (Fig. 4.3a, b). Ainsi, l'histoire du processus de coalescence peut se lire en regardant la touffe finale (Fig. 4.3c).

L'évènement élémentaire correspond à la coalescence entre deux lamelles. Si l'on répète l'expérience avec deux lamelles isolées, elles sont rigides à faible hauteur L et l'on observe une ascension capillaire à la hauteur de Jurin $h_J = 2\ell_c^2/d$, $\ell_c = \sqrt{\gamma/\rho g}$ étant la longueur capillaire ; les lamelles se collent à plus grand L et l'on observe alors que la longueur non mouillée $L_{\text{dry}} = L - L_{\text{wet}}$ reste constante (Fig. 4.3d). Ceci se comprend si l'on équilibre l'énergie de flexion $3B(d/L_{\text{dry}}^2)^2 L_{\text{dry}}$ avec l'énergie capillaire $2\gamma L_{\text{dry}}$ perdue en ne mouillant pas toute la hauteur entre lamelles, ce qui donne la hauteur sèche

$$L_{\text{dry}} = \frac{3^{1/2}}{2^{1/4}} \sqrt{d L_{\text{EC}}}, \quad \text{avec} \quad L_{\text{EC}} = \sqrt{\frac{B}{\gamma}} \quad (4.4)$$

que nous appelons longueur élastocapillaire, en accord avec les expériences (Fig. 4.3e).

Cette loi se généralise pour calculer la taille de formation d'un touffe de N lamelles. Il est plus favorable qu'elle se forme à partir de deux touffes de tailles $N/2$. Comme leur rigidité est $BN/2$ et leur séparation $Nd/2$, l'équation (4.4) donne

$$L_{\text{dry}} = \frac{\sqrt{3}}{2} N^{3/4} \sqrt{d L_{\text{EC}}}, \quad (4.5)$$

en accord avec les mesures du nombre maximal N_{max} de lamelles par touffe pour une hauteur d'extraction L donnée (Fig. 4.4a).

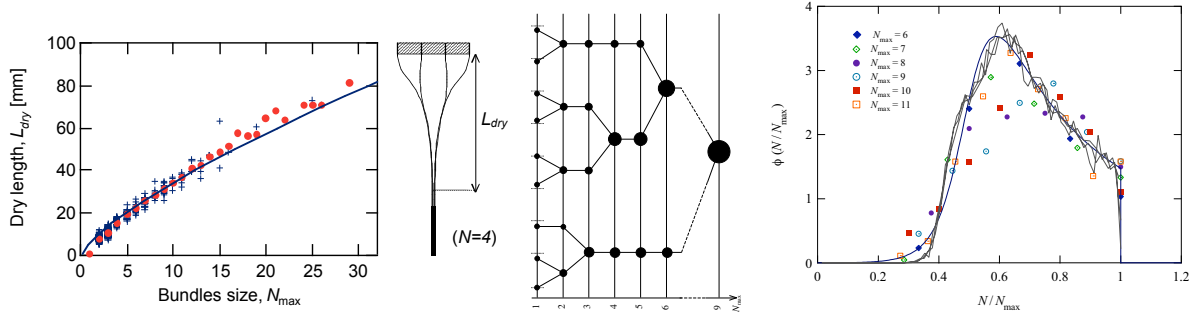


FIG. 4.4 – Caractérisation de la taille des touffes. **a** Longueur sèche L_{dry} en fonction du nombre de lamelles par touffe N_{max} et comparaison avec la théorie (ligne) sans paramètre ajustable. **b** Schématisation du modèle numérique : des particules initialement de masses 1 et réparties à peu près avec un intervalle constant sur une ligne subissent des événements de coalescence – à chaque étape, la paire de particules voisines ayant la plus petite séparation est remplacée par une seule particule (de masse égale à la somme des masses de la paire de particules) placée au centre de gravité. **c** Statistiques de tailles de touffe : probabilité de trouver une touffe de taille N , mise à l'échelle par la taille maximale N_{max} . Expériences (symboles variés), simulations numériques à 10^6 particules après $9,5 \cdot 10^5$, $9,7 \cdot 10^5$ et $9,9 \cdot 10^5$ étapes de coalescence (lignes fines), théorie de champ moyen (ligne épaisse).

Si la cascade était idéale, les touffes seraient toutes identiques, et, en retirant la brosse, le nombre de lamelles par touffe prendrait les valeurs 1, 2, 4, 8, ..., 2^m , ... En fait, dans l'expérience, nous observons une distribution étendue de tailles N de lamelles. Pour comprendre cet effet, nous avons construit un modèle numérique comme suit. Des particules initialement de masses 1 et réparties à peu près avec un intervalle constant sur une ligne subissent des événements de coalescence – à chaque étape, la paire de particules voisines (masses N_1 et N_2) ayant la plus petite séparation est remplacée par une seule particule (de masse $N_1 + N_2$) placée au centre de gravité des deux particules initiales (Fig. 4.4b). La simulation conduit aussi à une distribution étendue de tailles. Pour quantifier cette distribution pour une taille maximale N_{max} donnée (ce qui équivaut à se donner le temps dans le modèle numérique ou la longueur d'extraction dans les expériences), nous avons compté le nombre $n(N, N_{max})$ de paquets de taille N dans un système de taille initiale N_{lam} . L'existence d'une cascade suggère la forme auto-similaire

$$n(N, N_{max}) = \frac{N_{lam}}{N_{max}^2} \varphi(N/N_{max}), \quad (4.6)$$

où φ est une fonction inconnue à ce stade. Cette forme permet de réunir sur une seule courbe les statistiques expérimentales et numériques (Fig. 4.4c).

Pour mieux comprendre les statistiques, nous avons construit une théorie de champ moyen pour la densité $\mu(N, t) = n(N, N_{max})/N_{lam}$ de particules de taille (masse) N . L'équation cinétique s'écrit

$$\frac{\partial \mu}{\partial t}(N, t) = \frac{1}{2} \int dN_1 dN_2 K(N_1, N_2) \mu(N_1, t) \mu(N_2, t) \delta(N_1 + N_2 - N)$$

$$- \int dN_1 K(N, N_1) \mu(N, t) \mu(N_1, t). \quad (4.7)$$

Le temps équivaut à la donnée de la hauteur d'extraction L . Toute la difficulté réside dans la construction du taux de réaction K . Dans notre cas, à chaque instant, seuls des groupes de la taille maximale $N_{\max}(t)$ – une fonction croissante du temps imposée – sont formés, ce qui revient à choisir

$$K(m_1, m_2) = \frac{2}{c \int dm n(m, t)} \delta(N_{\max}^{-1}(N_1 + N_2) - t). \quad (4.8)$$

Le préfacteur de la fonction δ traduit le fait qu'une particule peut coalescer avec l'un de ses deux voisins parmi $N_{\text{clusters}} = \int dm n(m, t)$ particules, avec la probabilité c qui rend compte des corrélations spatiales et qui sera ajustée aux résultats du modèle numérique présenté ci-dessus. Nous avons cherché des solutions à l'équation cinétique sous la forme auto-similaire (4.6). La décomposition $\varphi(\xi) = \varphi_e(\xi - 1/2) + \varphi_o(\xi - 1/2)$ où φ_e et φ_o sont des fonctions paire et impaire, respectivement, permet de transformer l'équation intégrodifférentielle obtenue pour φ en un système d'équations différentielles ordinaires qui a une seule solution pour chaque valeur de la probabilité c . La valeur $c = 0,668$ donne le meilleur accord avec les simulations du modèle et est représentée dans la figure (Fig. 4.4c). Ainsi la taille d'une touffe de cheveux est déterminée par un processus d'aggrégation avec taille maximale. Si l'on revient vers l'aggrégation d'une assemblée de fibres, l'évènement élémentaire reste la coalescence de deux touffes, mais la bidimensionnalité donne plus de liberté à la dynamique et la géométrie du réseau sous-jacent transparaît dans les statistiques de coalescence.

Références : J. Bico, B. Roman, L. Moulin & A. Boudaoud. Elastocapillary coalescence in wet hair. *Nature* **432**, 690 (2004).

C. Py, R. Bastien, J. Bico, B. Roman & A. Boudaoud, 3D aggregation of wet fibers. Soumis à *Europhys. Lett.* (2006).

A. Boudaoud, B. Roman & J. Bico. Aggregation and fragmentation with a maximal size. En préparation (2006).

Clôture

Nous avons étudié deux formes d'auto-organisation faisant intervenir la coalescence et la non-coalescence. Dans le cas de gouttes rebondissantes, l'interaction se fait par l'intermédiaire des ondes de surface. La transition vers la marche et les motifs formés par les gouttes rappellent ainsi l'auto-adaptation d'un objet mobile dans une cavité vibrante [7, 8], où l'objet se déplace pour que la cavité soit à résonance avec le forçage. Ici la résonance des rebonds avec le forçage induit un déplacement des gouttes. Pour les tiges mouillées, l'interaction capillaire conduit à leur coalescence. L'étude de la distribution de tailles de paquets nous a conduit à introduire un nouveau type de processus d'aggrégation – l'aggrégation avec une taille maximale. La même idée peut s'appliquer à la fragmentation (voir notre publication). Notons que la séparation de deux lamelles collées par le liquide est équivalente à l'ouverture d'une fracture ou à la séparation de deux surfaces adhérent par des forces de van der Waals. Le même type d'approche pourrait être utilisé pour étudier macroscopiquement l'adhésion entre objets mous.

Chapitre 5

Après-propos

Pour conclure, nous rappelons nos principaux résultats et montrons les liens entre les sujets traités qui se sont mutuellement enrichis. Nous présentons ensuite les thématiques que nous comptons développer dans l’avenir.

5.1 Conclusions

Synthèse

Compactage et singularités. D’une part, nous avons développé une technique pour mesurer l’énergie du coeur de singularités de plaques comprimées – les cônes développables. D’autre part, nous avons montré que le compactage de tiges et feuilles élastiques possède trois propriétés essentielles – un comportement proche de celui de verres, un alignement local et une distribution étendue d’échelles caractéristiques – qu’il reste à étudier en profondeur.

Croissance et flambage. D’une part, nous avons montré le rôle de l’élasticité dans la croissance de cellules à parois. D’autre part, nous avons étudié plusieurs géométries pour le flambage engendré par des gradients de contraintes, en combinant théorie et expériences de gonflement de gels. Nous avons examiné la sélection des longueurs d’onde – une seule ou une multiplicité selon les cas. Quelles sont les conditions exactes qui conduisent à chacun de ces deux cas ?

Mouillage dynamique. Nous avons caractérisé le mouvement d’une ligne de contact pour des liquides non-newtoniens ou volatils et identifié des effets régularisant la singularité à la ligne de contact. Nous avons déterminé les conditions dans lesquelles des films en évaporation deviennent instables. Nous avons enfin montré que les lignes de contact se déplaçant sur un substrat hétérogène peuvent devenir rugueuses. Ces deux derniers résultats appellent de nouvelles expériences.

Auto-organisation. Nous avons expliqué l’inhibition par vibration de la coalescence d’une goutte avec un bain du même liquide. De telles gouttes rebondissent et peuvent émettre des ondes de surface par lesquelles elles interagissent et s’auto-organisent. Par ailleurs, nous avons étudié la coalescence capillaire de tiges en touffes. Les imperfections initiales

conduisent à une distribution étendue de nombre de tiges par touffe. Ce système constitue un exemple de compétition entre adhésion et déformations élastiques.

Lectures diagonales

Morphogenèse. C'est sans doute le maître-mot de ce mémoire. Nous nous sommes en effets intéressés à la génération de formes pour les assemblées de gouttes, les tiges et plaques élastiques, les films liquides et des systèmes composites liquide/solide.

Instabilités. Elles sont souvent sous-jacentes quand il s'agit de morphogenèse. Nous avons considéré la stabilité d'objets élastiques soumis à des gradients de contraintes et de films liquides en évaporation.

Singularités. Nous les avons étudiées dans les plaques – le coeur des cônes développables – et dans le mouvement d'une ligne de contact. Nous les avons utilisées – les plis d'une plaque – pour construire un modèle de papier froissé ou la forme, à forte compression, d'un film sur substrat élastique.

Phénomènes multi-échelles. Les singularités en font partie : une physique à « petite » échelle régularise une physique différente à plus grande échelle. Par contre, une multiplicité d'échelles apparaît dans le compactage de feuilles élastiques, le flambage d'une feuille plastique déchirée ou l'auto-assemblage capillaire de tiges.

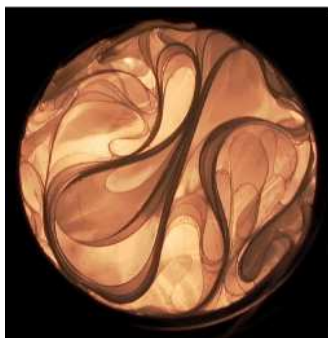
Approches statistiques. Nous avons utilisé des outils de physique statistique pour étudier les propriétés moyennes d'une tige confiné et d'une ligne de contact sur un substrat hétérogène. Nous avons utilisé les approches des processus d'aggrégation pour le modèle de papier froissé et pour la coalescence élastocapillaire.

Auto-similarité. C'est aussi un concept unificateur. Il s'agit d'auto-similarité de forme : exacte pour les fronces du plastique déchiré ou statistique pour le compactage, la ligne de contact rugeuse, et la coalescence élasto-capillaire. L'auto-similarité spatio-temporelle apparaît dans l'étalement de gouttes et la cinétique d'aggrégation.

5.2 Projets

Compactage, contraintes mécaniques et croissance

Le compactage est aussi relié à la croissance. En effet une feuille qui croît dans un bourgeon se retrouve compactée et elle se déplie à l'ouverture du bourgeon. Quelle est la relation entre le pliage et les veines ? Il semble que la croissance plus lente de la veine principale soit importante.



Avant de répondre à la question précédente, il faut étudier les configurations régulières que peut prendre une feuille élastique compactée. Nous envisageons deux dispositifs expérimentaux : une feuille placée dans un container et comprimée le long de son axe de symétrie – pour mimer la veine centrale ; le gonflement dans un container d’une plaque de gel de propriétés convénables. La seconde direction en ce qui concerne le compactage est l’approfondissement de notre étude préliminaire dans une géométrie quasi-bidimensionnelle (photographie ci-contre).

Comment quantifier la complexité des configurations et la relier aux mesures de forces ? Nous pourrions emprunter des outils aux études sur les empilements de matériaux granulaires.

Participants : L. Boué, S. Deboeuf, M. Adda-Bedia, coll. E. Sharon (MechPlant).

Dans les études présentées dans ce mémoire, nous avons laissé de côté la dynamique de la croissance et son couplage avec les contraintes mécaniques. Nous commençons à travailler à la modélisation de la croissance des os du crâne, le but pratique étant de comprendre et améliorer l’action des appareils dentaires.

Participants : F. Corson, M. Adda-Bedia, coll. M.-J. Deshayes (TCI).

D’autre part, nous réfléchissons à la conception d’un système pour l’application de contraintes mécaniques aux extrémités de tiges en croissance. Deux contraintes (au sens commun) s’imposent au dispositif : la partie active de la tige a un rayon de l’ordre de 0,1 mm et il ne faut pas blesser la plante. Quelle serait la réponse physiologique ?

Participants : S. Deboeuf, M. Adda-Bedia, collaboration C. Kuhlemeier (MechPlant).

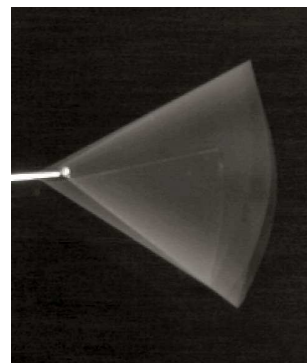
Objets flexibles et fluides

Nous avons vu dans la coalescence élastocapillaire que l’utilisation d’un fluide permet de mimer l’adhésion entre objets élastiques mous. Nous pouvons utiliser cette propriété pour étudier l’adhésion à l’échelle macroscopique, ce qui facilite les expériences. Nos deux préoccupations actuelles sont l’optimalité d’une patte de lézard qui permet de marcher au plafond et la délamination (Fig. 2.5b).

Participants : M. Adda-Bedia, J. Bico, B. Roman, A. Lindner.

Des objets flexibles placés dans un écoulement se déforment. Notre première étude est inspirée par l’observation que les feuilles de certains arbres se replient dans le vent, ce qui réduit la traînée de l’arbre et évite qu’il soit brisé. Nous avons placé des disques coupés le long d’un rayon et tenus par leur centre dans un écoulement. Le disque se replie en cône, réduisant sa traînée. Nous avons montré que l’angle de repliement est bien déterminé par un équilibre entre flexion et pression dynamique. Nous comptons changer la géométrie, en commençant par supprimer la coupure du disque.

Référence : L. Schouveiler & A. Boudaoud. The rolling-up of sheets in a steady flow. *J. Fluid. Mech.* **563**, 71-80 (2006).



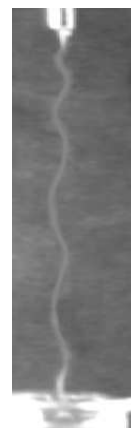
A plus long terme, je compte étudier des tiges placées dans un écoulement. Avec encore l'idée de transposition à l'échelle macroscopique, deux problématiques pourraient être la translocation d'une macromolécule à travers un pore et l'étude de la rhéologie d'assemblées de macromolécules.

Dynamique des objets flexibles

Le premier aspect dynamique sur lequel nous avons travaillé provient de l'analogie entre fluides visqueux et solides élastiques. Nous avons transposé le vrillage d'une tige élastique à un filament de fluide visqueux (photographie ci-contre).

Référence : A. Boudaoud & J. W. M. Bush. Twisting of viscous filaments. En préparation (2006).

Le second aspect concerne les vibrations d'une plaque avec singularités. Une pointe appuyant sur une plaque dans la géométrie produisant un seul cône développable (Fig. 1.1) est vibrée verticalement. Les expériences préliminaires montrent que la partie de la plaque qui n'est pas en contact avec le support peut se mettre en rotation à vitesse constante. Ceci rappelle la transition vers la marche des gouttes rebondissantes.



Participants : E. Hamm et F. Melo.

Dans le même cadre, nous comptons étudier les vibrations de grande amplitude d'une plaque suspendue. Cette expérience est inspirée par les dispositifs qui furent utilisées dans les théâtres pour produire le bruit du tonnerre : une grande plaque est secouée à faible fréquence, ce qui produit du bruit à plus haute fréquence. Cette constatation fait du système un bon candidat pour une observation de la turbulence d'ondes, qui a fait l'objet d'innombrables études théoriques mais qui a peu d'observations expérimentales. Il s'agit d'une interaction faible entre ondes qui permet le transfert d'énergie de grande à petite échelle (et parfois le contraire). A plus grande amplitude de vibrations, je m'attends à l'apparition de d-cônes qui pourrait interagir par les ondes, comme les gouttes qui marchent interagissent entre elles. Le système exhiberait alors une transition entre une turbulence faible et une turbulence forte similaire à la turbulence hydrodynamique où les vortex sont remplacés par les d-cônes.

Participants : S. Rica.

Clôture

Pour clôturer ce mémoire, je souhaite souligner le rôle central de la morphogenèse dans nos études et nos projets. Comment les échelles caractéristiques sont-elles sélectionnées ? Quel est le rôle de la géométrie et des contraintes appliquées au système ? Comment l'énergie est-elle transférée d'une échelle à l'autre ? Telles sont les questions qui m'ont guidé et guideront mes recherches dans un proche avenir.

Bibliographie

- [1] AUDOLY, B., AND POMEAU, Y. *Elasticity and geometry*. Oxford University Press, Oxford, 2007.
- [2] BEN AMAR, M., AND GORIELY, A. Growth and instability in soft tissues. *J. Mech. Phys. Sol.* (2005), in press.
- [3] BEN AMAR, M., AND POMEAU, Y. Crumpled paper. *Proc. R. Soc. Lond. A* 453 (1997), 729–755.
- [4] BIRD, R. B., ARMSTRONG, R. C., AND HASSAGER, O. *Dynamics of polymeric liquids*. John Wiley & Sons, New York, 1987.
- [5] BLAIR, D. L., AND KUDROLI, A. Geometry of Crumpled Paper. *Phys. Rev. Lett.* 94 (2005), 166107.
- [6] BONN, D., EGGERS, J., MEUNIER, J., AND ROLLEY, E. Wetting and spreading. *Rev. Mod. Phys.* (2006), submitted.
- [7] BOUDAUD, A., COUDER, Y., AND BEN AMAR, M. Self-adaptation in vibrating soap films. *Phys. Rev. Lett* 82 (1999), 3847–3850.
- [8] BOUDAUD, A., COUDER, Y., AND BEN AMAR, M. A self-adaptative oscillator. *Eur. Phys. J. B* 9 (1999), 159–165.
- [9] BOUDAUD, A., PATRÍCIO, P., COUDER, Y., AND BEN AMAR, M. Dynamics of singularities in a constrained elastic plate. *Nature* 407 (2000), 718–720.
- [10] BOWDEN, N., BRITTAIN, S., EVANS, A. G., HUTCHINSON, J. W., AND WHITESIDES, G. M. Spontaneous formation of ordered structures in thin films of metals supported on an elastomeric polymer. *Nature* 393 (1998), 146–149.
- [11] BURELBACH, J. P., BANKOFF, S. G., AND DAVIS, S. H. Nonlinear stability of evaporating/condensing liquid film. *J. Fluid Mech.* 195 (1988), 463–494.
- [12] CERDA, E., CHAÏEB, S., MELO, F., AND MAHADEVAN, L. Conical dislocations in crumpling. *Nature* 401 (1999), 46–49.
- [13] CERDA, E., AND MAHADEVAN, L. Conical surfaces and crescent singularities in crumpled sheets. *Phys. Rev. Lett* 80 (1998), 2358–2361.
- [14] CERDA, E., AND MAHADEVAN, L. Confined developable elastic surfaces : cylinders, cones and the elastica. *Proc. Roy. Soc. A* 461 (2005), 2534–2549.
- [15] COULLET, P. Localized patterns and fronts in nonequilibrium systems. *Int. J. Bifurc. Chaos* 12 (2002), 2445–2457.
- [16] COWIN, S. C. Tissue Growth and Remodeling. *Annu. Rev. Biomed. Eng.* 6 (2004), 77–107.

- [17] CROSS, M. C., AND HOHENBERG, P. C. Pattern-formation outside of equilibrium. *Rev. Mod. Phys.* 65 (1993), 851–1112.
- [18] DE GENNES, P.-G. Wetting : statics and dynamics. *Rev. Mod. Phys.* 57 (1985), 827–863.
- [19] DEEGAN, R. D., BAKAJIN, O., DUPONT, T. F., HUBER, G., NAGEL, S. R., AND WITTEN, T. A. Contact line deposit in an evaporating drop. *Phys. Rev. E* 62, 1 (1999), 217–239.
- [20] DENET, B. Numerical simulation of cellular tip growth. *Phys. Rev. E* 53 (1996), 986–992.
- [21] EDWARDS, S. F., AND GRINEV, D. V. Granular materials : towards the statistical mechanics of jammed configurations. *Adv. Phys.* 51 (2002), 1669–1684.
- [22] EDWARDS, W. S., AND FAUVE, S. Patterns and quasi-patterns in the faraday experiment. *J. Fluid Mech.* 278 (1994), 123–148.
- [23] EGGERS, J. Nonlinear dynamics and breakup of free-surface flows. *Rev. Mod. Phys.* 69 (1997), 865–929.
- [24] EGGERS, J., AND STONE, H. A. Characteristic lengths at moving contact lines for a perfectly wetting fluid : the influence of speed of the dynamic contact angle. *J. Fluid Mech.* 505 (2004), 309–321.
- [25] ELBAUM, M., AND LIPSON, S. G. How Does a Thin Wetted Film Dry Up? *Phys. Rev. Lett.* 72, 22 (1994).
- [26] FLORY, P. J. *Principles of Polymer Chemistry*. Cornell University Press, Ithaca, N. Y., 1980.
- [27] FRISCH, U. *Turbulence*. Cambridge University Press, 1995.
- [28] GENZER, J., AND GROENWOLD, J. Soft matter with hard skin : From skin wrinkles to templating and material characterization. *Soft Matter* 2 (2006), 310–323.
- [29] GIERZ, G., AND BARTNICKI-GARCIA, S. A three-dimensional model of fungal morphogenesis based on the vesicle supply center concept. *J. Theor. Biol.* 208 (2001), 151–164.
- [30] GORIELY, A., AND TABOR, M. Self-similar tip growth in filamentary organisms. *Phys. Rev. Lett.* 90 (2003), 108101.
- [31] KAM, R., AND LEVINE, H. Unicellular algal growth : A biomechanical approach to cell wall dynamics. *Phys. Rev. Lett.* 79 (1997), 4290–4293.
- [32] KATZAV, E., AND ADDA-BEDIA, M. Roughness of tensile crack fronts in heterogeneous materials. *Europhys. Lett.* (2006), in press.
- [33] KAVEHPOUR, H. P., OVRYN, B., AND MCKINLEY, G. H. Microscopic and macroscopic structure of the precursor layer in spreading viscous drops. *Phys. Rev. Lett.* 91 (2003), 196104.
- [34] KOCH, A. L. The problem of hyphal growth in streptomycetes and fungi. *J. Theor. Biol.* 171 (1994), 137–150.
- [35] LANDAU, L., AND LIFCHITZ, E. *Théorie de l'élasticité*. Mir, Moscou, 1990.
- [36] LÉGER, L., AND J.-F. JOANNY. Liquid spreading. *Rep. Prog. Phys.* 55 (1992), 431–486.

- [37] LEYVRAZ, F. Scaling theory and exactly solved models in the kinetics of irreversible aggregation. *Phys. Rep.* 383 (2004), 95–212.
- [38] LIANG, T., AND WITTEN, T. A. Spontaneous curvature cancellation in forced thin sheets. *Phys. Rev. E* 73 (2006), 046604.
- [39] LIFSHITZ, E. M. On the magnetic structure of iron. *J. Phys.* 8 (1944), 337–346.
- [40] LOBKOVSKY, A. E., AND WITTEN, T. A. Properties of ridges in elastic membranes. *Phys. Rev. E* 55 (1997), 1577–1589.
- [41] MATAN, K., WILLIAMS, R. B., WITTEN, T. A., AND NAGEL, S. R. Crumpling a Thin Sheet. *Phys. Rev. Lett.* 88, 7 (2002), 076101.
- [42] MATSUO, E. S., AND TANAKA, T. Patterns in shrinking gels. *Nature* 358 (1992), 482–485.
- [43] MEAKIN, P. Droplet deposition growth and coalescence. *Rep. Prog. Phys.* 55 (1992), 157–240.
- [44] MOULINET, S., GUTHMANN, C., AND ROLLEY, E. Roughness and dynamics of a contact line of a viscous fluid on a disordered substrate. *Eur. Phys. J E* 8 (1995), 437–443.
- [45] NECHAEV, S., AND VOITURIER, R. On the plant leaf’s boundary, ‘jupe à godets’ and conformal embeddings. *J. Phys. A* 34 (2001), 11069–1082.
- [46] ORON, A., DAVIS, S. H., AND BANKOFF, S. G. Long-scale evolution of thin liquid films. *Rev. Mod. Phys.* 69, 3 (1997), 931–980.
- [47] PELCÉ, P., AND SUN, J. Geometrical models for the growth of unicellular algae. *J. Theor. Biol.* 160 (1993), 375–386.
- [48] POGORELOV, A. V. *Bendings of surfaces and stability of shells*. No. 72 in Translation of mathematical monographs. American Mathematical Society, 1988.
- [49] POMEAU, Y. Recent progress in the contact line problem : a review. *C. R. Mecanique* 330 (2002), 207–222.
- [50] POMEAU, Y., AND RICA, S. Plaques très comprimées. *C. R. Acad. Sci. Paris Série II* 325 (1997), 181–187.
- [51] POULARD, C., BENICHO, O., AND CAZABAT, A. M. Freely receding evaporating droplets. *Langmuir* 19, 21 (2003), 8828–8834.
- [52] PUROHIT, P. K., INAMDAR, M. M., GRAYSON, P. D., SQUIRES, T. M., KONDEV, J., AND PHILLIPS, R. Forces during bacteriophage dna packaging and ejection. *Biophys. J.* 88 (2005), 851–866.
- [53] SHARON, E., ROMAN, B., MARDER, M., SHIN, G. S., AND SWINNEY, H. L. Buckling cascades in free sheets. *Nature* 419 (2002), 579–579.
- [54] STEELE, C. R. Shell stability related to pattern formation in plants. *J. Appl. Mech.* 67 (2000), 237–247.
- [55] TABER, L. A. Biomechanics of growth, remodeling, and morphogenesis. *Appl. Mech. Rev.* 48, 8 (1995), 487–545.
- [56] TANAKA, T., SUN, S.-T., HIROKAWA, Y., KATAYAMA, S., KUCERA, J., HIROSE, Y., AND AMIYA, T. Mechanical instability of gels at the phase transition. *Nature* 325 (1987), 796–798.

- [57] THWAITES, J. J., AND MENDELSON, N. H. Mechanical behavior of bacterial cell walls. *Adv. Microb. Physiol.* *32* (1999), 123–125.
- [58] VILLERMAUX, E. Fragmentation. *Ann. Rev. Fluid Mech.* *39* (2006), 419–446.
- [59] VLIEGENTHART, G. A., AND GOMPPER, G. Forced crumpling of self-avoiding elastic sheets. *Nature Mat.* *5* (2006), 216–221.
- [60] WITTEN, T. A. Stress focusing in elastic sheets. *Rev. Mod. Phys.* (2006), submitted.
- [61] YARIN, A. L. Drop impact dynamics : Splashing, spreading, receding, bouncing... *Annu. Rev. Fluid Mech.* *38* (2006), 159–192.

Spiral Patterns in the Packing of Flexible Structures

L. Boué, M. Adda-Bedia, A. Boudaoud,* D. Cassani, Y. Couder, A. Eddi, and M. Trejo

Laboratoire de Physique Statistique de l'Ecole Normale Supérieure, 24 Rue Lhomond, 75231 Paris Cedex 05, France

(Received 20 July 2006; published 20 October 2006)

Spiral patterns are found to be a generic feature in close-packed elastic structures. We describe model experiments of compaction of quasi-1D sheets into quasi-2D containers that allow simultaneous quantitative measurements of mechanical forces and observation of folded configurations. Our theoretical approach shows how the interplay between elasticity and geometry leads to a succession of bifurcations responsible for the emergence of such patterns. Both experimental forces and shapes are also reproduced without any adjustable parameters.

DOI: [10.1103/PhysRevLett.97.166104](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.97.166104)

PACS numbers: 68.55.-a, 46.32.+x, 46.65.+g

Illustrations of tightly packed flexible structures abound in nature from plant leaves in buds [1], insect wings in cocoons [2], DNA in viral capsids [3], chromatin in cell nuclei [4] to crumpled sheets [5–14] and rods [15–17]. This situation is often a consequence of the structures' own growth within a container or of a decrease in the available volume. In most cases the geometrical arrangement of the folding plays a central role in ensuring a safe deployment [1,4]. Besides, the elastic properties of these confined systems are further constrained by self-avoidance as well as by the dimensionality of both structures and containers. The interplay of these mechanisms usually yields a variety of possible self-organized patterns [1–17]. Their complexity led to approaches separating elastic forces [5,7–11,17] and geometrical configurations [6,16,18,19]. So far, in experiments on crumpled thin sheets [6,11,12] and rods [16], it has remained elusive to simultaneously determine mechanical forces and the corresponding configurations. Here, we make these measurements possible with an intermediate approach: the quasi-two-dimensional confinement of thin sheets. Ideally, this would correspond to the folding of an elastic rod when it is confined isotropically in a disk of decreasing radius, or equivalently when an elastic rod grows within a disk of fixed radius. We identify spirals as the building block of the apparently complex patterns observed and study in detail the generation of an isolated spiral. In parallel, our theoretical approach accounts for both elasticity and self-avoidance and agrees quantitatively with experiments.

Our first experimental setup, designed in a *conical geometry*, is inspired by the one used to study single developable cones [8,9]. A circular sheet of typical radius 40 cm and thickness $h = 0.1$ mm is pulled through a circular rigid hole of radius R of the order of 1 cm [Fig. 1(a)]. The distance Z between the pulling point and the plane of the hole serves as a control parameter. As it is much easier to bend the sheet than to stretch it, the sheet first assumes the shape of a developable cone, except near the tip where the pulling force is applied. This setup allows a quasi-one-dimensional, isotropic confinement as: (i) a cut across the

sheet in the plane of the hole yields a rodlike one-dimensional structure of length $L = 2\pi Z$, which grows within a disk of radius R as Z is increased—the shape of the cross section actually prescribes the shape of the whole sheet due to the approximately self-similar conical shape.

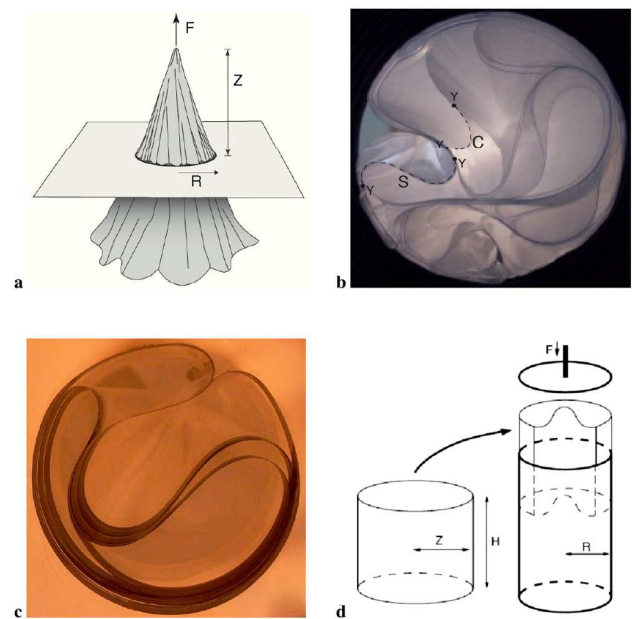


FIG. 1 (color online). Experimental setups and patterns. We used Mylar sheets of thickness $h = 0.1$ mm and bending modulus $B = 6.610^{-4}$ N m. (a) Setup for conical packing. A sheet of radius 40 cm is pulled through a hole of radius 1 cm. (b) Typical pattern at high confinement ($p = 15\%$). Examples of Y points (bifurcations), C curves, and S curves are shown. (c) Typical pattern at lower confinement ($p = 3\%$). A double-layered S curve inside a set of C curves forming a smaller effective container. (d) Setup for cylindrical packing. Sheets of height $H = 14$ cm are glued into a cylinder and introduced into a Plexiglass container of inner radius $R = 2.6$ cm and height 38 cm. The sheet is pushed at small velocity (0.5 mm s^{-1}) with an aluminum disc of radius 5 cm, and the pushing force F is recorded in a steady state (results in Fig. 3).

(ii) It is ensured that there is no preferred direction in the disk.

The strength of the confinement can be measured using the ratio of a cross-sectional area to that of the hole $p = Lh/S$ with $S = \pi R^2$. When most of sheet has been pulled through the hole, the packing fraction p can be as large as 20%. Figure 1(b) shows a deceptively complex shape typically observed for high confinements. However, a careful glance allows one to abstract out some much simpler well-defined patterns: (i) Y points where a stack of layers bifurcates tangentially into two groups; (ii) curves connecting Y points, which can themselves be classified into two types: C curves and S curves (with and without inflexion points, respectively).

Generically, S curves appear to link concave C curves acting as a flexible shell smaller than the outer rigid disk. These observations suggest that in order to understand close packing, one should focus on the generation of these elementary patterns. It is possible to isolate them during the early stages of the packing process and Fig. 1(c) shows an S curve, assuming a yin-yang-like shape, enclosed in a container formed of stacks of three C curves. While the pressure exerted on the container could be related to the pulling force F , friction on the container and configurational changes are mixed up, which results in a rather circumvoluted interpretation of F .

Thanks to Ref. [17], we know that conical and cylindrical geometries are described by the same equations except for some slightly different developability constraints. Besides, for large confinements, a slender cone is obviously equivalent to a cylinder. Therefore, we devised a second experimental setup designed in a *cylindrical geometry*. A sheet of height H and width L is glued into a cylinder of radius $Z = L/2\pi$. With its configuration prepared according to the topologies observed in the conical geometry, the sheet is introduced inside a smaller cylindrical container of radius R and let to relax to an equilibrium shape by tapping in order to minimize the effect of friction at the lineic self-contacts. Then the folded sheet is pushed along the inside of the container [Fig. 1(d)]. The pushing force F is recorded when a steady state is reached. Because F is proportional to the mean pressure P exerted on the container through Coulomb's law: $F = \mu 2\pi RHP$, this new setup achieves the goal of simultaneous observation of configurations and measurement of pressures. The dynamic friction coefficient $\mu = 0.37$ between the sheet and the container was measured independently.

The classical theory of bending due to Bernoulli and Euler stands as a cornerstone in elasticity theory. Within this framework, the mechanical properties and the shape of rods and cylindrical sheets can be determined by solving the equation of Euler's *Elastica*:

$$B \left[\frac{d^2 \kappa}{ds^2} + \left(a^2 + \frac{1}{2} \kappa^2 \right) \kappa \right] = k, \quad (1)$$

where κ is the curvature of the rod at arclength s , B is the bending modulus, a is an undetermined constant of integration, and k represents the external normal forces. However, the obvious physical constraint of self-avoidance gives rise to many complications in the prescription of suitable boundary conditions. Also, since the position and nature of these contacts is not known *a priori*, the formulation results in a nonlinear free-boundary problem. The boundary conditions necessary to close this formulation are determined at all n Y points that may be present in the rod and can be separated into two kinds: (i) *local mechanical equilibrium*. Because of torque and tangential forces equilibrium, the curvature κ is continuous all along the rod and the constants a_i $\{i = 1, \dots, n\}$ satisfy simple algebraic relations. The exact form of these compatibility equations depends on the nature of the Y point considered (localized or extended contact between curves) but always stems from tangential forces equilibrium. On the other hand, normal forces are proportional to local changes in curvature and provide a set of relations between the values of the curvature derivative κ' just before and after Y points. In this case one also needs to include other normal forces that may come from self-contacts or from the container itself. (ii) *Geometrical self-avoidance*. Regions of the rod that are initially far away from each other may end up in close vicinity during the packing process. In order to account for the impossibility of self-intersections in such regions, we require that whenever two (or more) points become in contact, they are bound together sharing a common position whose global location is otherwise free to move. Also, extended regions of contact are described by a new C or S curve whose thickness is adjusted according to the number of layers of which this region is made up.

The numerical resolution involves a shooting and branch tracking method. We start with a set of $5n$ shooting parameters: $\{\phi_i, \kappa_i, \kappa'_i, a_i, \ell_i\}_{i=1, \dots, n}$, where ϕ stands for the angle of the tangent to the rod with a constant direction ($d\phi/ds = \kappa$) and ℓ_i is the length between two consecutive Y points. Some of these parameters can be derived directly from the boundary conditions specified above, otherwise initial guesses are made for the remaining ones. The difference between their values and the desired boundary values at the other end of the integration interval is set up as a function which zeros are found with a Newton method. Eventually, this procedure yields the configurations of the sheet from which the corresponding mean pressures on the container can be extracted.

Now we describe the successive phases leading to the generation of spirals during the packing process. We compare the experiments and the numerics as the ratio between the excess perimeter of the cylindrical sheet and the perimeter of the container $\epsilon = (Z - R)/R = (L - 2\pi R)/2\pi R$ is increased. For low confinements, a symmetrical fold [Fig. 2(a) and 2(b)] grows inwards until its extremities become diametrically opposed. A first bifurcation occurs at

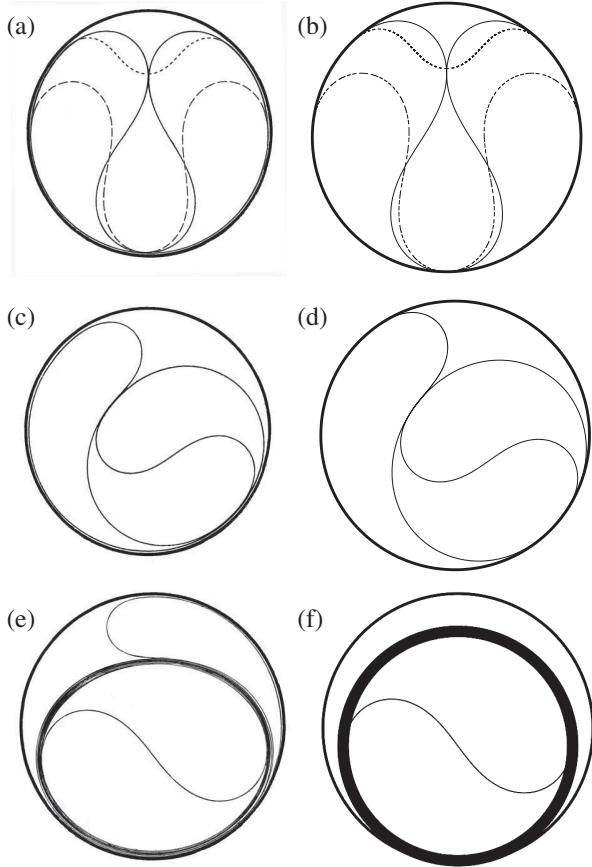


FIG. 2. Configurations for cylindrical packing. Experiments (left) and numerics (right) are almost indistinguishable. (a), (b) Symmetric configurations with no self-contact ($\epsilon = 0.016$, short dashed line), one self-contact point ($\epsilon = 0.31$, continuous line), and two self-contact points ($\epsilon = 0.66$, long dashed line). (c), (d) First asymmetric configuration for $\epsilon = 0.85$. The S curve and the surrounding C curves form a yin-yang-like pattern. (e) Yin-yang pattern at high confinement $\epsilon = 9.4$. The thick C curves are formed of 10 layers. (f) Numerical shape of the S curve in the yin-yang pattern for very large confinements. In this case, the C curves form a rigid circular effective container.

$\epsilon = 0.23$ and the contact between the sheet and the container reduces to two diametrically opposed points (inset 2 of Fig. 3). Then at $\epsilon = 0.25$, a first self-contact appears between the inward fold and the C curve. As ϵ is increased, this contact point is driven back toward the disk and finally reaches it, thereby creating rather peculiar configurations displaying 3 localized contacts with their container, which exist in the range $0.31 < \epsilon < 0.39$ (inset 4 of Fig. 3). This additional support leads to an increase in the external pressure although the gap between the two C curves and the disk is too thin to be observed experimentally. Eventually these C curves come back in contact with the container leaving only two symmetrical S curves connected through a contact point with the disk, for $0.39 < \epsilon < 0.62$ [Fig. 2(a) and 2(b)]. A second self-contact ap-

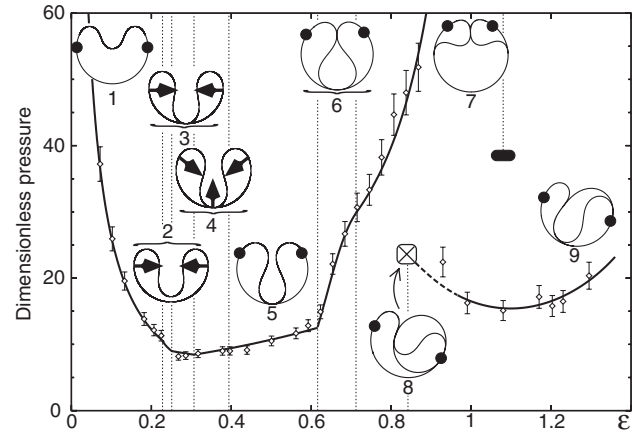


FIG. 3. Mean pressure as a function of confinement for cylindrical packing. The pressure is given in units of B/R^3 . Diamonds correspond to experimental measurements and lines to theoretical results. The dashed line corresponds to metastable asymmetric configurations reflecting the hysteretic character of the transition; the cross signals a termination of the asymmetric branch. Vertical dashed lines correspond to separations between different types of numerical configurations shown as insets numbered from 1 to 9. Single contacts with the container are labeled with force vectors; lineic contacts with the container are delimited by disks.

pears at $\epsilon = 0.62$ [Fig. 2(a) and 2(b)]. Above $\epsilon = 0.71$, the lower contact point flattens out into an extended zone of self-contact (inset 7 of Fig. 3). While configurations with an axis of symmetry disappear at $\epsilon = 1.04$, asymmetric configurations may appear above $\epsilon = 0.85$ [Fig. 2(c) and 2(d)]: a lower bump of one S curve suddenly dives into the convex part of the second S curve forcing the lower self-contact to slide away from its symmetrical position. The transition between the two types of configurations is thus hysteretic. At this point, we observe experimentally that the inner S curve begins to rotate surrounding itself by spiral layers of C curves [Fig. 1(c)]. While the size of the outer loop (formed by the remaining S curve) decreases, a yin-yang-like shape embedded in an effective spiral container promptly develops [Fig. 2(e)]. When multiple turns have been completed, the outermost layer of the C curves is almost a circle and the pattern is formed of an S curve surrounded by a spiral of pitch equal to the thickness of the sheet h . The shape of the S curve can easily be determined numerically and is shown in Fig. 2(f). The pressures computed numerically are in good agreement with the experimental values (Fig. 3).

In three dimensions, the uniform close packing of a rod yields an optimal helix with a pitch and a radius proportional to the thickness of the rod [18,19]. In two dimensions, we propose that the optimal packing of a rod yields a spiral of pitch equal to the thickness of the rod h , one of the rod extremities being at the center of the spiral. This tiling is optimal because the only unoccupied region is the core

of the spiral, which area is of the order of h^2 . Indeed, this geometrical construction naturally arises in our experiments on cylindrical sheets. However, a yin-yang pattern [Fig. 2(e)] is found in the core because a cross section of the sheet does not have any extremity inside the core; moreover, the radius of the core is in general much larger than h because of the high elastic cost of bending the sheet on such a small scale.

Now we turn to the estimation of the pressure needed to maintain such a structure within a surface of area $S = \pi R^2$ in terms of the packing ratio $p = Lh/S$. The area of the core is approximately the difference between S and the area occupied by the sheet Lh . Therefore, the radius of the core is given by $R_c = \sqrt{(S - Lh)/\pi}$. Its bending energy is proportional to B/R_c :

$$E_{S \text{ curve}} = \alpha \frac{\sqrt{\pi}B}{\sqrt{S}} \frac{1}{\sqrt{1-p}}, \quad (2)$$

where $\alpha = 17.44$ is the nondimensioned energy of the S curve as found numerically [Fig. 2(f)]. Besides, the radius of curvature of the spiral increases by an amount of h each time a new layer surrounds the inner core:

$$\frac{1}{\kappa(\theta)} = \frac{h}{2\pi} \theta + \sqrt{\frac{S - Lh}{\pi}} \quad (3)$$

in terms of the polar angle θ . Integrating the square of the curvature κ , we obtain the elastic energy of the spiral:

$$E_{\text{spiral}} = \frac{\pi B}{2h} \ln \frac{1}{1-p}. \quad (4)$$

From this, one can compute the total bending energy (per unit height) $E = E_{\text{spiral}} + E_{S \text{ curve}}$ and thus the mechanical pressure $P = -\partial E/\partial S$,

$$P = \frac{\pi B}{2hS} \frac{p}{1-p} + \alpha \frac{\sqrt{\pi}B}{2S^{3/2}} \frac{1}{(1-p)^{3/2}}. \quad (5)$$

This expression matches a simple scaling $P \sim BL/S^2$ at low packing ratio ($p = Lh/S \ll 1$) to a nontrivial divergence when $p \sim 1$ because of the high energetic cost of the core. This equation successfully reproduces the experimental measurements for spiral configurations with packing ratios p as large as 15% (such as in Fig. 2(e)).

In this Letter we showed how spirals are generated from a sequence of bifurcations. In an ideal system we would expect only one spiral. However, in real situations, friction between layers of C curves kicks in for higher confinements and tends to freeze the C curves into an effective thicker and more rigid sheet. This creates effective containers within which the same sequence is repeated, generating new spiraling patterns. While the underlying individual pockets still grow in a spiral fashion, an apparently com-

plex pattern emerges from this cascade of bifurcations [Fig. 1(b)]. Although we investigated a simplified geometry for packing, our results have a wider scope because they are based on the key ingredients of elasticity and self-avoidance. Indeed, for the more complex packing of 2D elastic sheets in 3D containers, a cut through a crumpled ball of paper yields 1D curves, the topology of which could correspond to an assembly of spirals. This is the subject of work in progress.

This work was partly supported by the Ministre de la Recherche-ACI Jeunes Chercheurs and by the EEC MechPlant NEST project. Laboratoire de Physique Statistique is associated with the CNRS (UMR No. 8550) and Universities Paris VI and Paris VII.

*Electronic address: arezki.boudaoud@lps.ens.fr

- [1] H. Kobayashi, B. Kresling, and J.F.V. Vincent, *Proc. R. Soc. B* **265**, 147 (1998).
- [2] J.H. Brackenbury, *J. Zool.* **232**, 253 (1994).
- [3] P.K. Purohit, M.M. Inamdar, P.D. Grayson, T.M. Squires, J. Kondev, and R. Phillips, *Biophys. J.* **88**, 851 (2005).
- [4] N. Kleckner, D. Zickler, G.H. Jones, J. Dekker, R. Padmore, J. Henle, and J.A. Hutchinson, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.* **101**, 12 592 (2004).
- [5] A. Lobkovsky, S. Gentges, H. Li, D. Morse, and T. Witten, *Science* **270**, 1482 (1995).
- [6] F. Plouraboué and S. Roux, *Physica (Amsterdam)* **227A**, 173 (1996).
- [7] M. Ben Amar and Y. Pomeau, *Proc. R. Soc. A* **453**, 729 (1997).
- [8] S. Chaïeb, F. Melo, and J.C. Geminard, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2354 (1998).
- [9] E. Cerda, S. Chaïeb, F. Melo, and L. Mahadevan, *Nature (London)* **401**, 46 (1999).
- [10] A. Boudaoud, P. Patricio, Y. Couder, and M. Ben Amar, *Nature (London)* **407**, 718 (2000).
- [11] K. Matan, R.B. Williams, T. Witten, and S.R. Nagel, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 076101 (2002).
- [12] D.L. Blair and A. Kudrolli, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 166107 (2005).
- [13] G.A. Vliegenthart and G. Gomper, *Nat. Mater.* **5**, 216 (2006).
- [14] E. Sultan and A. Boudaoud, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 136103 (2006).
- [15] B. Roman and A. Pocheau, *Europhys. Lett.* **46**, 602 (1999).
- [16] C.C. Donato, M.A.F. Gomes, and R.E. de Souza, *Phys. Rev. E* **67**, 026110 (2003).
- [17] E. Cerda and L. Mahadevan, *Proc. R. Soc. A* **461**, 671 (2005).
- [18] A. Maritan, C. Micheletti, A. Trovato, and J.R. Banavar, *Nature (London)* **406**, 287 (2000).
- [19] S. Przybyl and P. Pieranski, *Eur. Phys. J. E* **4**, 445 (2001).

Self-Similar Structures near Boundaries in Strained Systems

B. Audoly*

*Laboratoire de modélisation en mécanique, UMR 7607 du CNRS, Université Pierre et Marie Curie,
4 place Jussieu, F-75252 Paris Cedex 05*

A. Boudaoud

*Laboratoire de Physique Statistique, UMR 8550 du CNRS, École normale supérieure, 24 rue Lhomond, F-75231 Paris Cedex 05
(Received 8 April 2003; published 21 August 2003)*

We study the buckling of thin elastic plates caused by residual strains concentrated near a free edge. This is a model for plant leaves and torn plastic sheet morphologies. We derive new governing equations explaining self-similar patterns reported earlier in experiments. We reveal the cascade mechanism, determine the bounds for its wavelengths, and predict a similarity factor of 3 in agreement with experiments. This is confirmed by numerical solutions with up to five generations of wrinkles.

DOI: 10.1103/PhysRevLett.91.086105

PACS numbers: 68.55.-a, 46.32.+x

Self-similar structures are ubiquitous in nature. Examples range from snowflakes to turbulent flows. The complexity of such structures often prevents their full physical understanding: turbulence [1], for instance, is still the subject of numerous investigations. In some cases, self-similarity arises from minimization of the system energy, as in ferromagnetic materials [2,3] or in martensitic phase transitions [4]. In a recent paper [5], self-similar wrinkles were observed along the edge of torn plastic sheets and along the edge of plant leaves. Such plastic sheets exhibit a cascade of wrinkles with wave numbers k , αk , $\alpha^2 k$, $\alpha^3 k$, ..., with the self-similarity factor measured as $\alpha \approx 3.2$. Plastic flow near the crack tip or enhanced tissue growth near the leaf edge stretches a thin rectangular strip of material along the boundary. Wrinkling allows relaxation of the resulting strain [6]. This is reminiscent of the buckling of thin films under strong compression [7–9], although the physics turns out to be different (different energy scalings, role played by embeddings, ...). While the wrinkles observed in experiments are often self-similar [5], a precise account of such patterns based on the equations of elasticity is still lacking. Preliminary attempts based on the theory of elastic rods could account for wrinkling [10,11] but not for self-similarity. In this Letter, we address this problem starting from the full equations for elastic plates. We uncover the mechanism responsible for the cascade and fully characterize its self-similar structure: we predict $\alpha = 3$ and determine the cutoff wavelengths. Our results are supported by numerical calculations showing up to five generations of wrinkles. Incidentally, we give a numerical answer to the existence of embeddings, an open problem in the differential geometry of surfaces [12]. We believe that the present work will extend to other systems where metric properties are important, as in general relativity, and where patterns follow from energy minimization.

In this Letter, we consider a thin elastic sheet with a stretched edge. In contrast to classical plates, its natural

configuration is described by a non-Euclidean 2D metric:

$$ds^2 = (1 + g(y))^2 dx^2 + dy^2, \quad (1)$$

where (x, y) are coordinates such that the stretched edge is at $y = 0$ (Fig. 1). We use a Lagrangian description, as usual in elasticity, the reference state being parametrized by (x, y) . When $g(y) \geq 0$ in Eq. (1), the reference planar configuration is in unstable equilibrium due to a compressive strain $\epsilon_{xx} = -g(y)$. The aim of the present work is to study relaxation of these stresses by buckling.

Such a metric accounts for stretched edges, as obtained in torn plastic sheets or in plant leaves. The form (1) of the metric is the most general one that is invariant along the edge direction x [13]. We shall not try to explicitly relate the metric profile $g(y)$ to microscopic features (plasticity, cell growth) of these systems, but instead consider this model problem in its full generality and take $g(y)$ as given. We shall retain only two physical features of g : it is negligible far away from the edge $y = 0$ and varies over a small characteristic length. In torn plastic sheets, this small length scale comes from the regularization of divergent elastic stresses near the crack tip.

We derive the equations of elastic equilibrium for plates with a stretched edge by extending the classical theory [14] to account for $g(y)$. Deformations of thin plates can be decomposed into bending and stretching. Because of the small parameter h/R , the ratio of the thickness to the typical extent of the plate, bending costs much less energy than stretching, and purely flexural deformations are preferred. Such deformations may or may not exist depending on the form of $g(y)$. They exist provided one can find a surface in the usual 3D Euclidean space whose metric coincides with (1), as it yields a configuration with zero stretching energy. This geometrical question is classically referred to as finding (*isometric*) embeddings of an abstract manifold with metric (1) in \mathbb{R}^3 .

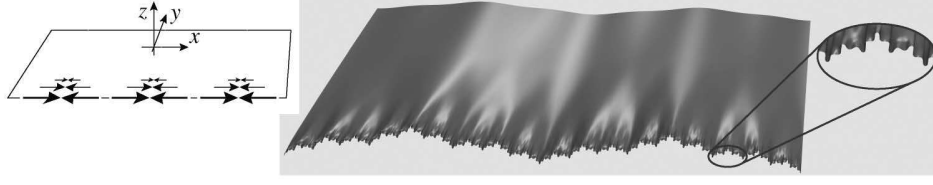


FIG. 1. An elastic plate buckles into a self-similar pattern due to residual strains near the edge (inset). Numerical solution for thickness $h = 2.9 \times 10^{-5}$, width 1, metric perturbation $g(y) = 1/(1 + y/\ell)$, $\ell = 0.008$, yielding wavelength $2\pi/k = 0.54$.

Despite its simplicity, the existence of embeddings for arbitrary $g(y)$ remains an open question [12]. As a result, one does not even know the structure of the lowest energy configurations of a sheet with a stretched edge, nor the order of magnitude of its elastic energy. We will give a numerical answer to this question and discuss in detail the structure of equilibrium configurations.

We first derive our plate model. Let $u(x, y)$, $v(x, y)$, and $\zeta(x, y)$ be, respectively, the x , y , and z components of the displacement. In the small slope and small in-plane displacement approximations, the 2D strains of the mean

surface read $\epsilon_{xx} = u_{,x} + \zeta_{,x}^2/2 - g(y)$, $\epsilon_{yy} = v_{,y} + \zeta_{,y}^2/2$, and $\epsilon_{xy} = (u_{,y} + v_{,x} + \zeta_{,x}\zeta_{,y})/2$, where $f_{,x}$ stands for $\partial f/\partial x$. The Föppl–von Kármán (FvK) equations for plates are built upon this form of the strains [14] in the simpler particular case $g(y) = 0$. These equations have been the subject of renewed interest in the context of singularities [15–17]. Here, the presence of $g(y)$ in ϵ_{xx} favors configurations close to the natural metric (1) rather than developable ones as for classical plates.

For small $g(y)$, strains remain small and Hookean (linear) elasticity leads to the following energy [14]:

$$\mathcal{E} = \iint dx dy \left(\frac{Eh}{2(1-\nu^2)} [\nu(\epsilon_{xx} + \epsilon_{yy})^2 + (1-\nu)(\epsilon_{xx}^2 + 2\epsilon_{xy}^2 + \epsilon_{yy}^2)] + \frac{Eh^3}{24(1-\nu^2)} (\Delta\zeta)^2 \right), \quad (2)$$

where E and ν are the Young's modulus and the Poisson ratio of the material. The first term in the integral is the stretching energy \mathcal{E}_s built upon the in-plane stresses given above while the second term is the bending energy.

We restrict our analysis to periodic solutions in the direction x parallel to the edge. The wave number k in this direction will later be selected by energy minimization. Fourier components are denoted using a superscript $[q]$, where the integer q tags the harmonic. Applying the Parseval formula to the stretching energy yields

$$\mathcal{E}_s = \frac{Eh}{2(1-\nu^2)} \int dy \sum_{qq'ii'jj'} \epsilon_{ij}^{[q]}(y) A_{ij,i'j'}^{q,q'} \epsilon_{i'j'}^{[q']}(y), \quad (3)$$

where the numbers $A_{ij,i'j'}^{q,q'}$ were computed from Eq. (2). The bending energy in (2) was transformed similarly.

The equilibrium equations, obtained by variation with respect to u , v , and ζ , are not given here as they have no analytical solutions in general—even the simpler problem of finding an embedding, i.e., of solving $\epsilon_{ij} = 0$ for

$i, j = x, y$, has no general solution. Their numerical solution is also difficult because of the small parameter h/R , of the high order of derivation, and of the number of unknown functions (u, v, ζ).

To circumvent these difficulties, we introduce an approximation that leads to a fast numerical implementation of the buckling problem and allows for simpler analysis while leaving unchanged the salient features of the system. The elastic energy [stretching energy in Eq. (3) plus similar bending energy] is a quadratic form of the Fourier components $\epsilon_{ij}^{[q]}(y)$ and $\zeta^{[q]}(y)$. Instead of minimizing the full quadratic form, we set to zero some suitably chosen components and minimize with respect to the remaining ones. We chose to set to zero the components $\epsilon_{xx}^{[q]} = 0$ and $\epsilon_{xy}^{[q]} = 0$ for $q > 0$, which yields u and v in terms of $\zeta(x, y)$ directly: the benefit of the approximation, discussed at the end of this Letter, is that u and v can be eliminated from the energy functional (2), hence one unknown function remains instead of three. This leads to the following energy in terms of $\zeta(x, y)$ only:

$$\mathcal{E} = \frac{Eh}{2(1-\nu^2)} \int dy \left[\left(\left\langle \frac{1}{2} \zeta_{,x}^2 \right\rangle - g(y) \right)^2 + \frac{1}{2} \sum_{q>0} \left(\frac{\{\zeta_{,xx}\zeta_{,yy} - \zeta_{,xy}^2\}^{[q]}}{k^2 q^2} \right)^2 + \frac{h^2}{12} \langle (\Delta\zeta)^2 \rangle \right], \quad (4)$$

where brackets $\langle f \rangle = f^{[0]}$ denote averages over x .

The stretching energy appearing in Eq. (4) has a simple geometric interpretation. Gauss's *theorem egregium* states that Gaussian curvature K is conserved by embeddings. In the limit $|g| \ll 1$, the Gaussian curvature associated with metric (1) is $K(x, y) = -g''(y)$, while for a profile $\zeta(x, y)$, it reads $K(x, y) = \zeta_{,xx}\zeta_{,yy} - \zeta_{,xy}^2$. Therefore,

no stretching $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy} = \epsilon_{xy} = 0$ ($\mathcal{E}_s = 0$) corresponds to $\zeta_{,xx}\zeta_{,yy} - \zeta_{,xy}^2 = -g''(y)$. The first Fourier component of this last equality integrated twice with respect to y yields $\langle \zeta_{,x}^2/2 \rangle = g(y)$, while any nonzero Fourier component q reads $\{\zeta_{,xx}\zeta_{,yy} - \zeta_{,xy}^2\}^{[q]} = 0$; one recognizes the stretching terms in Eq. (4). This shows that our

stretching energy penalizes any deviation from an embedding and, conversely, that embeddings have no stretching energy. Our approximation scheme is specifically designed to respect embeddings in this sense and, to our knowledge, it is the first one having this key property.

The elastic energy (4) is invariant when $g(y)$ and the other quantities $[\zeta(x, y), h, \dots]$ are rescaled by an overall factor $G: g(y) \mapsto g(y)/G, \zeta \mapsto \zeta/\sqrt{G}, \dots$. This shows, surprisingly, that the self-similar solutions obtained below may exist for arbitrarily small perturbation $g(y)$ of the flat metric, provided the plate is thin enough. In the following, the energy is minimized with respect to the fundamental wave number k and to the Fourier components $\zeta^{[q]}(y)$ of the deflection ($q = 0, 1, 2, \dots$). This minimization is based on 1D finite elements for the functions $\zeta^{[q]}(y)$ ($0 \leq q \leq q_{\max}$). The particular form of our energy leads to a very efficient implementation allowing interactive calculations and solution tracking (Figs. 3 and 4).

By numerical minimization of the elastic energy (4) we obtained self-similar solutions with up to five generations of wrinkles (Fig. 1). They were found to be absolute minima of energy when $g(y)$ is peaked near $y = 0$ with a small length scale there (see introduction). The cascade is generated by period tripling, and exhibits the wave numbers $k, 3k, 9k, 27k$, and $81k$. We now explain this period tripling using symmetries. The reflection invariance $\zeta \mapsto -\zeta$ in the plate Eq. (4) leads to the coupling of *odd* Fourier components $\zeta^{[q]}(y)$ only. As a result, the self-similarity factor α must map odd integers to odd integers: this leaves only odd integers ($\alpha = 3, 5$, etc.) as eligible values. Our simulation shows that $\alpha = 3$ yields the lowest energy, although solutions for $\alpha = 5$ do not cost much more. This compares well with the experimental $\alpha \approx 3.2$ reported in Ref. [5]. The slight discrepancy can be attributed to experimental nonlinearities of the order of 1 while $|g| \ll 1$ here. Moreover, a factor α close to 5 has indeed been observed in some experiments [18].

From the form of the stretching energy in Eq. (4), self-similar solutions are invariant under the transform:

$$\bar{x} = 3x, \quad \bar{y} = 3y, \quad \bar{q} = q/3, \quad \frac{\bar{q}\zeta^{[\bar{q}]}(\bar{y})}{\sqrt{\bar{g}(\bar{y})}} = \frac{q\zeta^{[q]}(y)}{\sqrt{g(y)}}, \quad (5)$$

where we restrict our analysis to the case $\alpha = 3$. This invariance is confirmed by the collapse of numerical functions $\zeta^{[q]}(y)$ (Fig. 2). Note that the fixed-point function of the collapse is not universal and depends on $g(y)$.

The order of magnitude of the fundamental wave number k is given by the macroscopic extent of the plate (its width in our simulations and in experiments). This gives the largest wavelength of the solution. Its smallest wavelength is determined by a mechanism analyzed below. The cascade takes place over all intermediate scales by successive period tripling.

Regularization of the wrinkles at very small scales is due to bending effects, which penalize short scale oscillations. Let λ be the smallest wrinkling wavelength, and

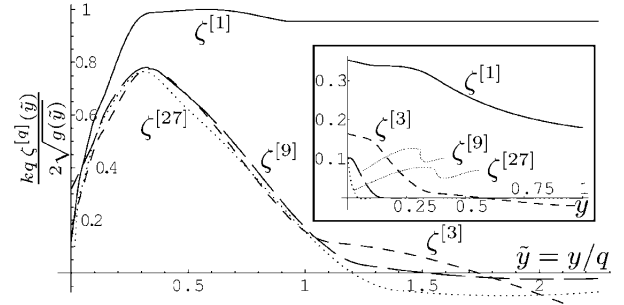


FIG. 2. Fourier components $\zeta^{[q]}(y)$ ($q = 1, 3, 9, 27$) of the deflection for a numerical self-similar solution with four generations (inset) and their collapse using transform (5). $\zeta^{[1]}(y)$ need not collapse away from the stretched edge (i.e., large y). Same parameters as in Fig. 1, except for $h = 2.9 \times 10^{-4}$.

$\ell = |g(0)/g'(0)|$ be the small length scale induced by $g(y)$ near the edge. The cutoff λ is found by balancing stretching and bending energies at scale λ . For the metric used in the simulations of Fig. 3, this yields $\lambda \sim h^{2/5}\ell^{3/5}$, in agreement with the numerics. Incidentally, this formula shows that a cascade requires a small scale ℓ in the metric: if ℓ is too large, only one wavelength is present.

Our plate model and its numerical implementation provide insights into the physical structure of the self-similar solutions. Earlier papers suggested that the mechanism responsible for the cascade is essentially geometric [5,6]: embeddings with a single wavelength would disappear when ℓ becomes small enough and be replaced by embeddings made of wrinkles with many wavelengths. According to this scenario, the bifurcation would take place for purely geometrical reasons. In direct contrast, we show below that self-similar solutions are selected by flexural effects: the interplay between elasticity and geometry is essential.

To demonstrate this, we considered a one-parameter family of functions $g_\ell(y)$, and tracked solutions minimizing the total elastic energy while ℓ was varied. As shown in Fig. 4, when the small length scale ℓ is decreased, the

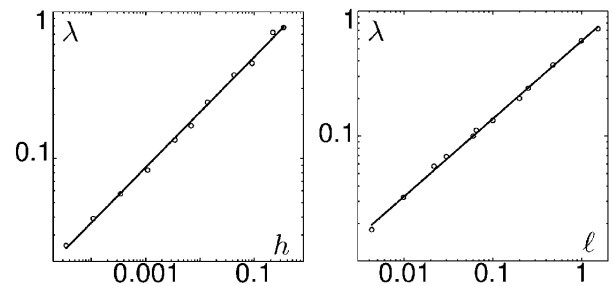


FIG. 3. Numerical check of scaling law $\lambda \sim h^{2/5}\ell^{3/5}$: smallest wavelength λ in the cascade versus plate thickness h (left panel) and metric typical length ℓ (right panel) for the family of metric perturbations $g_\ell(y) = 1/(1 + y/\ell)$. Thick lines are best power-law fits, yielding exponents 0.38 and 0.62, respectively.

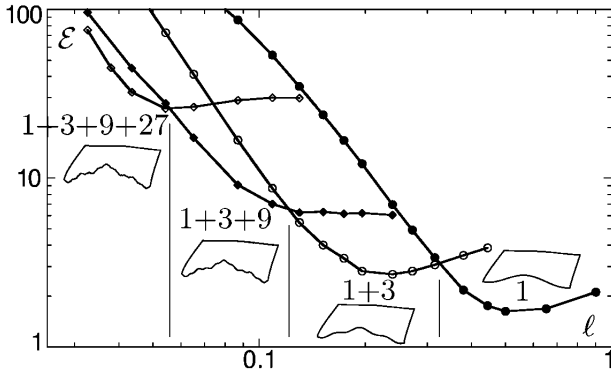


FIG. 4. Total elastic energy of solutions with one to four generations of wrinkles for the one-parameter family of metrics $g_\ell(y) = 1/(1 + y/\ell)$. Unit of energy is the bending modulus [i.e., the prefactor of the bending energy in Eq. (2)]. Bifurcations occur while all branches remain close to embeddings: they are selected by minimization of bending energy.

lowest energy configuration bifurcates from a single wavelength (“1”) to a cascade of wrinkles by successive period tripling (up to “1 + 3 + 9 + 27”). Remarkably, all these configurations were found numerically to converge to embeddings in the limit $h \rightarrow 0$ [19]. This shows that, for a given $g_\ell(y)$, there exist *many* embeddings, one of which is made up of oscillations at a single length scale while others are a superposition of wrinkles with many wavelengths. This rules out the possibility of a merely geometrical selection. Among these several embeddings, self-similar configurations are selected because their bending energy is smaller. Indeed, near the edge, the curvature along the x direction is of the order of ξ/λ^2 , while that along y is of the order of ξ/ℓ^2 . To minimize stretching, the boundary almost has its natural length, hence $\xi \sim \lambda\sqrt{g(0)}$. The density of bending energy $Eh^3g(0)(1/\lambda + \lambda/\ell^2)^2$ is therefore minimum when $\lambda \sim \ell$. Qualitatively, this means that small wavelengths are favored near the boundary, hence the cascade.

This mechanism and all the main findings of this Letter are robust with respect to the approximations used to derive our plate energy (4). The small slope approximation in our definition of strains (as in the FvK equations) is justified by our finding of self-similar solutions for small $g(y)$, hence for small strains and slopes. Concerning the additional constraints put on some of the strain components to simplify the form of the energy functional, we stress that (i) this approximation respects embeddings, thereby avoiding overestimation of the energy by a large factor [8], a difficulty that can arise in poorer approximation schemes; (ii) that for some particular configurations we have relaxed these constraints and resorted to the classical FvK equations without observing qualitative changes in the resulting patterns, but at the price of a much higher CPU usage; (iii) that our main findings summarized below are robust and still hold for the full FvK equations, as can be checked directly.

We have explained the formation of self-similar wrinkles in elastic plates with a stretched edge as follows. In a first (geometrical) step, configurations are restricted to embeddings to avoid a strong penalization by the stretching energy; this problem is degenerate: many profiles are possible, as shown numerically. In a second (elastic) step, self-similar wrinkles are selected due to the presence of a small characteristic length ℓ near the edge. The invariant magnification factor $\alpha = 3$ was predicted, in agreement with experiments. The bounds for the wavelengths present in the cascade were determined. Unexpectedly, self-similar patterns can be found for arbitrarily small $g(y)$ (G invariance), so that the cascade is not due to strong nonlinearities. We have pointed out a new mechanism by which the underlying non-Euclidean metric properties of a physical system generates self-similar patterns.

We would like to thank K. R. Min for presenting us her experiments and M. Marder, B. Roman, and E. Sharon for fruitful discussions.

*URL: <http://www.lmm.jussieu.fr/~audoly/>

- [1] B. B. Mandelbrot, *J. Fluid Mech.* **72**, 401 (1975).
- [2] R. Choksi, R. V. Kohn, and F. Otto, *Commun. Math. Phys.* **201**, 61 (1999).
- [3] E. M. Lifshitz, *J. Phys. (Paris)* **8**, 337346 (1944).
- [4] S. Conti, *Commun. Pure Appl. Math.* **53**, 1448 (2000).
- [5] E. Sharon, B. Roman, M. Marder, G. S. Shin, and H. L. Swinney, *Nature (London)* **419**, 579 (2002).
- [6] S. Nechaev and R. Voiturier, *J. Phys. A* **34**, 11069 (2001).
- [7] Y. Pomeau and S. Rica, *C.R. Acad. Sci. Paris Ser. II* **325**, 181 (1997).
- [8] W. Jin and P. Sternberg, *J. Math. Phys. (N.Y.)* **42**, 192 (2001).
- [9] H. B. Belgacem, S. Conti, A. DeSimone, and S. Müller, *Arch. Ration. Mech. Anal.* **164**, 1 (2002).
- [10] B. Audoly and A. Boudaoud, *C.R. Mecanique* **330**, 831 (2002).
- [11] M. Marder, E. Sharon, B. Roman, and S. Smith, *Europhys. Lett.* **62**, 498 (2003).
- [12] M. Spivak, *Differential Geometry* (Publish or Perish Inc., Berkeley, CA, 1979), Vol. 5.
- [13] Any metric that depends only on the distance to the edge $ds^2 = g_{xx}(y)dx^2 + 2g_{xy}(y)dxdy + g_{yy}(y)dy^2$ can be reduced to (1) by superposition of the in-plane displacement $u(y) = -2 \int dy g_{xy}$ and $v(y) = - \int dy (g_{yy} - 1)$.
- [14] L. Landau and E. Lifshitz, *Theory of Elasticity* (Pergamon, Oxford, 1986).
- [15] A. E. Lobkovsky, S. Gentges, H. Li, D. Morse, and T. A. Witten, *Science* **270**, 1482 (1995).
- [16] M. Ben Amar and Y. Pomeau, *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **453**, 729 (1997).
- [17] E. Cerda, S. Chaieb, F. Melo, and L. Mahadevan, *Nature (London)* **401**, 46 (1999).
- [18] B. Roman and E. Sharon (private communication).
- [19] By tracking metastable solutions while letting their bending modulus go to zero, we found that their stretching energy converges to zero faster than h , therefore yielding embeddings in the limit $h \rightarrow 0$.

Evaporation of a thin film: diffusion of the vapour and Marangoni instabilities

By ERIC SULTAN, AREZKI BOUDAUD
AND MARTINE BEN AMAR

Laboratoire de Physique Statistique, Ecole Normale Supérieure, 24 rue Lhomond,
75231 Paris Cedex 05, France

(Received 26 April 2004 and in revised form 18 May 2005)

The stability of an evaporating thin liquid film on a solid substrate is investigated within lubrication theory. The heat flux due to evaporation induces thermal gradients; the generated Marangoni stresses are accounted for. Assuming the gas phase at rest, the dynamics of the vapour reduces to diffusion. The boundary condition at the interface couples transfer from the liquid to its vapour and diffusion flux. The evolution of the film is governed by a lubrication equation coupled with the Laplace problem associated with quasi-static diffusion. The linear stability of a flat film is studied in this general framework. The subsequent analysis is restricted to diffusion-limited evaporation for which the gas phase is saturated in vapour in the vicinity of the interface. The stability depends then only on two control parameters, the capillary and Marangoni numbers. The Marangoni effect is destabilizing whereas capillarity and evaporation are stabilizing processes. The results of the linear stability analysis are compared with the experiments of Poulard *et al.* (2003) performed in a different geometry. In order to study the resulting patterns, an amplitude equation is obtained through a systematic multiple-scale expansion. The evaporation rate is needed and is computed perturbatively by solving the Laplace problem for the diffusion of vapour. The bifurcation from the flat state is found to be a supercritical transition. Moreover, it appears that the non-local nature of the diffusion problem affects the amplitude equation unusually.

1. Introduction

Since the pioneering studies of Thomson (1855), Marangoni (1865) and Bénard (1900), much attention has been devoted to what are now called Marangoni instabilities. Thomson and Marangoni first proposed surface tension gradients as a cause for convection in liquids. The Marangoni effect is due to the variation of surface tension with temperature or liquid composition and drives this class of instability. The hexagonal patterns observed by Bénard (1900) in thin layers heated from below prompted a number of studies (for reviews, see Davis 1987 and Schatz & Neitzel 2001). Recent research in this field has focused on the correct description of the gas above the fluid layer and of the deformability of the interface (VanHook *et al.* 1997; Golovin, Nepomyashchy & Pismen 1997), or the effect of local heating (Miladinova *et al.* 2002; Kalliadasis, Kiyashko & Demekhin 2003; Yeo, Craster & Matar 2003).

Marangoni effect can also be driven by evaporation. Many experimental situations of interest are reviewed by Berg, Boudart & Acrivos (1966). On the one hand, evaporation generates thermal gradients as the phase transformation requires latent heat. For spreading droplets of slightly volatile liquids, Redon, Brochard-Wyart &

Rondelez (1992) reported festoon instabilities near the contact line while Kavehpour, Ovryn & McKinley (2002) measured height fluctuations over the whole drop. Hegseth, Rashidnia & Chai (1996) observed vigorous interior flow in evaporating droplets of a volatile liquid. On the other hand, in the case of mixtures, a difference of the evaporation rate between components changes the relative concentrations at the interface and so generates surface tension gradients. Fournier & Cazabat (1992), Vuilleumier *et al.* (1995), Fanton & Cazabat (1998) and Hosoi & Bush (2001) studied tears of wine and the associated convection rolls. Nguyen & Stebe (2002) showed instabilities induced by surfactants. This composition mechanism may enhance evaporation and is therefore useful in drying techniques (Marra & Huethorst 1991; O'Brien 1993; Matar & Craster 2001).

A comprehensive theoretical stability analysis of evaporating/condensing films was done by Burelbach, Bankoff & Davis (1988). They included vapour recoil and thermocapillarity, but as in subsequent studies (see Oron, Davis & Bankoff 1997; Margerit *et al.* 2003; Merkt & Bestehorn 2003), the evaporation and condensation are governed by the departure from thermodynamic equilibrium at the interface. Within this framework evaporation is intrinsically destabilizing as can be seen in Prosperetti & Plesset (1984) who did not consider Marangoni stresses. In the case of very thin films (Elbaum & Lipson 1994) microscopic forces may be destabilizing as shown by Samid-Merzel, Lipson & Tannhauser (1998) and Lyushnin, Golovin & Pismen (2002). It is worth noting here that all models developed in these papers are one-sided: they do not account for the gas-phase dynamics except through the boundary condition at the interface.

In contrast, Deegan *et al.* (1997, 1999) showed that evaporation of pinned water droplets is limited by diffusion of vapour in air, thus they explained the origin of coffee stains. Cachile *et al.* (2002) explained their experiments on freely receding evaporating droplets within the same framework. They also observed the drops of certain fluids to lose their axisymmetry and the contact line to become wavy (Poulard, Benichou & Cazabat 2003). These unexplained instabilities are among the motivations of the present study. In particular, the established one-sided model would always predict an instability for evaporation.

Our aim here is to generalize the one-sided study of Burelbach *et al.* (1988) for evaporating thin films by taking into account the diffusion of the vapour. In §2, we build a model which includes both thermodynamically determined transfer of the molecules across the interface and diffusion of vapour in the gas phase. This generalizes the two class of models presented above. We describe the liquid film within lubrication theory taking into account surface tension gradients and loss of mass. In §3, we perform the full linear stability analysis of this system. Then we restrict to the diffusion-limited regime which is relevant for the experiments of Poulard *et al.* (2003). We find the amplitude equation describing patterns above instability onset. Finally, in §4, we compare our results with the experiments of Poulard *et al.* (2003).

2. The model

We consider the dynamics of a two-dimensional bi-layered liquid–gas system over a solid substrate (figure 1). The gas phase is a mixture of an inert gas and of the vapour of the liquid, which is volatile. We assume that the gas phase is not saturated by the vapour so that the liquid evaporates. The typical corresponding experimental situation is that of a water layer evaporating in air. The latent heat needed for the phase transformation drives a heat flux to the interface in the liquid. The induced temperature variations may generate surface tension gradients.

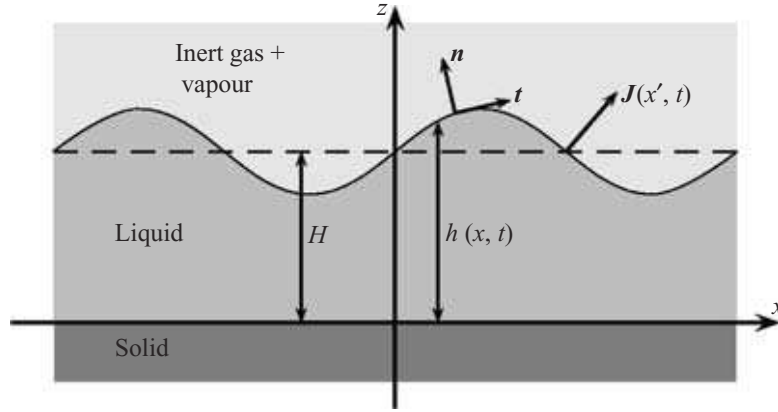


FIGURE 1. Geometry of the physical system.

	Water	Nonane	Octane	Heptane	Hexane
ρ_ℓ (kg m ⁻³)	1000	717	699	682	656
\mathcal{L}_v (J kg ⁻¹)	2.4×10^6	3.18×10^5	3.82×10^5	3.21×10^5	3.22×10^5
γ (kg s ⁻²)	7.20×10^{-2}	22.38×10^{-3}	21.77×10^{-3}	20.31×10^{-3}	18.42×10^{-3}
μ (kg m ⁻¹ s ⁻¹)	8.9×10^{-4}	6.65×10^{-4}	5.08×10^{-4}	3.87×10^{-4}	3.0×10^{-4}
$\frac{d\rho^{\text{eq}}}{dT}$ (kg m ⁻³ K ⁻¹)	1.4×10^{-3}	1.7×10^{-3}	5.3×10^{-3}	1.1×10^{-2}	2.7×10^{-2}
$\left \frac{d\gamma}{dT} \right $ (kg s ⁻² K ⁻¹)	1.5×10^{-4}	9.4×10^{-5}	9.53×10^{-5}	9.80×10^{-5}	1.02×10^{-4}
v_{ev} (m s ⁻¹)	0.48×10^{-6}	0.2×10^{-6}	0.6×10^{-6}	2.2×10^{-6}	6.8×10^{-6}
v_{th} (m s ⁻¹)	148	52	55	58.8	63.3
κ (kg m s ⁻³ K ⁻¹)	0.60	1.31×10^{-1}	1.28×10^{-1}	1.23×10^{-1}	1.20×10^{-1}
D_{air} (m ² s ⁻¹)	1.9×10^{-5}	3×10^{-6}	3×10^{-6}	3×10^{-6}	3×10^{-6}

TABLE 1. Values of physical parameters for different fluids at $P = 1$ atm and $T = 25^\circ\text{C}$ (Lide 1995): liquid density ρ_ℓ , latent heat \mathcal{L}_v , surface tension γ , liquid viscosity μ , temperature derivative of gas density at equilibrium $d\rho^{\text{eq}}/dT$, temperature derivative of surface tension $d\gamma/dT$, evaporation velocity v_{ev} , thermal (kinetic) velocity v_{th} , thermal conductivity of the liquid κ and diffusion coefficient of the vapour in air D_{air} . v_{ev} is estimated from the experiments on evaporating drops Poulard *et al.* (2003) using the formula $v_{\text{ev}} = j_0/R$ where j_0 is the evaporation parameter and R is the drop radius; the diffusion coefficient in air D_{air} is roughly estimated using kinetic theory; using Clapeyron relation, we have $d\rho^{\text{eq}}/dT = (\rho^{\text{eq}}/P)(\mathcal{L}_v/T\Delta v) - \rho^{\text{eq}}/T$ where Δv is the volume change associated which the vaporization and ρ^{eq} is evaluated using the vapour pressure at saturation under 1 atm (Lide 1995).

The model derived below is built on the lubrication approximation for the liquid layer, and accounts for surface tension variations and loss of mass through evaporation. The gas phase is at rest; its dynamics is reduced to the diffusion of the vapour in the mixture. For a complete description of the system, the boundary conditions at the interface are needed and, in particular, the evaporation rate must be specified. Although this analysis is focused on evaporating films, it applies to the case of condensation as well.

The physical situation of interest is that of volatile liquids such as water and alkanes evaporating in air. A compilation of the physical parameters is given in table 1. The

governing equations will be obtained within some approximations, which are relevant to these liquids and will be justified at the end of this section.

We restrict the study to a two-dimensional system with coordinates x along the substrate and z in the normal direction (figure 1). The state of the system is determined by the height $h(x, t)$ of the interface and the density $\rho(x, z, t)$ of vapour in the gas phase (both are functions of space and time). In the following, we write the equations describing the flow and heat diffusion in the liquid phase, diffusion in the gas phase and then the boundary conditions at the interface.

2.1. The liquid film

We consider a very thin film so that we work within the long-wavelength approximation (lubrication theory) where the typical height H is much smaller than the typical horizontal scale and we neglect gravity. Our starting point for the evolution of the thin film is a lubrication equation following Oron *et al.* (1997)

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} \left\{ \frac{h^3}{3\mu} \left[\gamma \frac{\partial^3 h}{\partial x^3} + \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{J^2}{\rho_v} \right) \right] + \frac{h^2}{2\mu} \frac{\partial \gamma}{\partial x} \right\} = -\frac{J}{\rho_\ell} \quad (2.1)$$

where μ is the viscosity of the fluid and γ is the surface tension. The last term in the brackets comes from the shear stress due to surface tension gradients. The right-hand side corresponds to the volume loss through evaporation. ρ_ℓ is the liquid density, ρ_v the vapour density and J the mass flux across the interface. Let J_0 be the characteristic evaporation rate. The ratio $v_{ev} = J_0/\rho_\ell$ is the relevant velocity scale in the system. Vapour thrust comes from the back reaction of molecules leaving the liquid into the gas phase; it is a quadratic effect in the evaporation rate. Other forces such as Van der Waals are not included.

2.2. Surface tension gradient

To close equation (2.1) we first need to compute the surface tension gradient. We assume the substrate to be isothermal at a temperature T_{subs} . We use the standard linear equation of state for the surface tension

$$\gamma(T) = \gamma_0 - \left| \frac{d\gamma}{dT} \right| (T - T_{\text{subs}}). \quad (2.2)$$

where $\gamma_0 = \gamma(T_{\text{subs}})$. This approximation is accurate over a large temperature range for most common liquids (not too close to a phase transition). We use the absolute value of $(d\gamma/dT)(T = T_{\text{subs}})$ as surface tension decreases with temperature for most liquids. The temperature field $T(x, z)$ satisfies the standard convection–diffusion equation in the liquid which reduces to $\partial^2 T / \partial z^2 = 0$ in the long-wavelength approximation. Neglecting density, viscosity, thermal diffusivity and kinetic energy of the gas the energy balance at the interface gives the heat flux (Oron *et al.* 1997)

$$\kappa \frac{\partial T}{\partial z}(z = h(x)) = -\mathcal{L}_v J$$

\mathcal{L}_v being the vaporization latent heat per unit mass, and κ the thermal conductivity of the liquid. We obtain

$$T(z = h(x)) = -\frac{\mathcal{L}_v J(x)}{\kappa} h(x) + T_{\text{subs}}. \quad (2.3)$$

Equations (2.2), (2.3) result in

$$\gamma = \gamma_0 + \left| \frac{d\gamma}{dT} \right| \frac{\mathcal{L}_v}{\kappa} h J. \quad (2.4)$$

To close the system (2.1), (2.4) one has to compute the evaporation rate J .

Number	Definition	Signification	Water	Nonane	Octane	Heptane	Hexane
Ca (10^{-8})	$\frac{\mu v_{ev}}{\gamma}$	$\frac{\text{viscous stresses}}{\text{capillary stresses}}$	0.6	0.6	1.4	4.2	11
Ma (10^{-6})	$H \frac{\mathcal{L}_v v_{ev} \rho_\ell}{\kappa \gamma} \left \frac{d\gamma}{dT} \right $	$\frac{\text{Marangoni stresses}}{\text{capillary stresses}}$	0.7	0.3	1.1	3.8	13
Pe (10^{-9})	$v_{ev} \frac{H}{D}$	$\frac{\text{evaporation time}}{\text{diffusion time}}$	4.9	2.0	6.1	22	69
Pe_k	$v_{th} \frac{H}{D}$	$\frac{\text{kinetic time}}{\text{diffusion time}}$	1.5	3.5	3.7	3.9	4.2
χ	$v_{th} \frac{d\rho^{eq}}{dT} \frac{\mathcal{L}_v H}{\kappa}$	density fluctuations	0.16	0.05	0.20	0.38	1.03
$\frac{Pe_k}{\chi}$	$\frac{\kappa}{D(d\rho^{eq}/dT)\mathcal{L}_v}$	diffusion limited v.s. one-sided regime	9.4	70	18.5	10.3	4.1
θ (10^{-6})	$\rho_\ell v_{ev} \frac{\mathcal{L}_v}{\kappa} \frac{H}{T_{subs}}$	temperature fluctuations	1.3	0.4	1.1	4.0	12
Λ (10^{-11})	$\frac{\rho_\ell^2 v_{ev}^2 H}{\rho_v \gamma_0}$	$\frac{\text{vapour thrust}}{\text{capillarity}}$	2.8	0.6	1.9	9.0	31

TABLE 2. Typical values for the non-dimensional parameters.

It will prove useful in the following to find an upper bound for the amplitude of the temperature variation on the interface. With the help of (2.3), we obtain: $\Delta T = \mathcal{L}_v J_0 \Delta h / \kappa$, Δh being the height fluctuation. The height fluctuations Δh are smaller than H . Thus, the reduced temperature $\Delta T / T_{subs}$ is bounded by $\theta = (\mathcal{L}_v J_0 / \kappa)(H / T_{subs})$, H being the characteristic thickness of the film. From table 2, we see that θ is very small for the liquids we are interested in.

2.3. The vapour

The gas phase is at rest, so that there is only diffusion of the vapour. We consider the limit of quasi-static diffusion where the characteristic diffusion time is much smaller than the characteristic evaporation time $H^2 / D \ll H \rho_\ell / J_0$, D being the diffusion coefficient of the vapour in the gas phase. In terms of the Péclet number $Pe = v_{ev} H / D$, that condition is $Pe \ll 1$. Hence, the vapour concentration $\rho(x, z, t)$ (local number of particles per unit volume in the gas phase) is a solution of Laplace's equation:

$$\nabla^2 \rho = 0, \quad (2.5)$$

$\nabla^2 = \partial^2 / \partial x^2 + \partial^2 / \partial z^2$ being the two-dimensional-Laplacian.

The gas phase is not saturated by the vapour. This condition is enforced by a constant diffusion rate at infinity

$$\frac{\partial \rho}{\partial z} \sim -\frac{J_0}{D}, \quad z \rightarrow +\infty. \quad (2.6)$$

Experimentally, either the gas is pumped at the top of the container (Mancini & Maza 2003) or the temperature of a top plate is fixed (VanHook *et al.* 1997). In both situations, the gas density is imposed at a certain height above the film, which induces a density gradient. Here, we impose the value of this gradient assuming that the height of the gas phase is much larger than other lengths in the system.

To solve (2.5) a boundary condition at the interface is needed. It is obtained in the next subsection.

2.4. Evaporation rate

The vapour and the liquid are coupled through the evaporation rate. The kinetic theory leads to a linear constitutive relation between the mass and the departure from equilibrium at the interface, known as the Hertz–Knudsen relation (Prosperetti & Plesset 1984):

$$\mathbf{J}_{\text{mol}} = \alpha \sqrt{\frac{k_B T_{\text{int}}}{2\pi M}} (\rho_v^{\text{eq}}(T_{\text{int}}) - \rho|_{\text{int}}) \mathbf{n} \quad (2.7)$$

where M is the molecular weight, ρ_v^{eq} is the density of the gas at the liquid/gas coexistence, $\rho|_{\text{int}} = \rho(z = h(x))$ is the gas density at the interface, k_B is the Boltzmann constant, α is the accommodation coefficient (close to unity) and \mathbf{n} is the outward normal to the interface. We note that $v_{\text{th}} = \alpha \sqrt{k_B T_{\text{int}}/(2\pi M)}$ which is a typical kinetic velocity.

In the gas phase, the vapour mass flux, related to the departure from uniform vapour density, is given by

$$\mathbf{J} = -D \nabla \rho. \quad (2.8)$$

Due to the continuity of the normal evaporative flux at the interface, we have

$$-D(\mathbf{n} \cdot \nabla) \rho|_{\text{int}} = v_{\text{th}}(\rho^{\text{eq}}(T_{\text{int}}) - \rho|_{\text{int}}). \quad (2.9)$$

Writing a linear temperature-dependent equation of state and using (2.3), one obtains for the equilibrium density at the interface:

$$\rho^{\text{eq}}(T) = \rho^{\text{eq}}(T_{\text{subs}}) - \frac{d\rho_{\text{eq}}}{dT} \frac{\mathcal{L}_v}{\kappa} h J.$$

Thus, the boundary condition at the interface (2.9) may be rewritten as

$$-D \left(1 + v_{\text{th}} \frac{d\rho_{\text{eq}}}{dT} \frac{\mathcal{L}_v}{\kappa} h \right) (\mathbf{n} \cdot \nabla) \rho|_{\text{int}} = v_{\text{th}}(\rho^{\text{eq}}(T_{\text{subs}}) - \rho|_{\text{int}}). \quad (2.10)$$

This is a mixed boundary condition in the sense that it relates the value of the density and its normal gradient at the interface. It corresponds to the conservation of mass i.e. the equality of the evaporation rate and the mass flux in the gas. It includes both diffusion and transfer across the interface which were treated separately in the literature (see §§ 2.6, 2.7 and 4.1).

2.5. Governing equations. Non dimensional parameters

For the rescaling of the equations, we choose the typical thickness H of the liquid layer, the characteristic evaporation time $H/v_{\text{ev}} = H\rho_\ell/J_0$, the mass flux far from the substrate J_0 and $J_0 H/D$ as units, respectively, of length, time, evaporation rate and density of vapour in the gas phase. We make the substitutions $h \rightarrow H\tilde{h}$, $x \rightarrow H\tilde{x}$, $z \rightarrow H\tilde{z}$, $J \rightarrow \rho_\ell v_{\text{ev}} \tilde{J}$, $\rho \rightarrow \rho^{\text{eq}}(T_{\text{subs}}) + \tilde{\rho}(J_0 H/D)$ in equations (2.1), (2.4) and (2.5), (2.6), (2.10). The lubrication equation becomes

$$\frac{\partial \tilde{h}}{\partial \tilde{t}} + Ca^{-1} \frac{\partial}{\partial \tilde{x}} \left\{ \frac{\tilde{h}^3}{3} \frac{\partial}{\partial \tilde{x}} \left(\frac{\partial^2 \tilde{h}}{\partial \tilde{x}^2} + \Lambda \tilde{J}^2 \right) + Ma \frac{\tilde{h}^2}{2} \frac{\partial(\tilde{h} \tilde{J})}{\partial \tilde{x}} \right\} = -\tilde{J} \quad (2.11)$$

where we have introduced

$$Ca = \frac{\mu v_{\text{ev}}}{\gamma_0}, \quad Ma = H v_{\text{ev}} \rho_\ell \frac{\mathcal{L}_v}{\kappa} \frac{1}{\gamma_0} \left| \frac{d\gamma}{dT} \right|, \quad \Lambda = \frac{\rho_\ell^2 v_{\text{ev}}^2 H}{\rho_v \gamma_0}$$

respectively the *capillary*, the *Marangoni* and the *vapour thrust* numbers. The Laplace problem is

$$\tilde{\nabla}^2 \tilde{\rho} = \frac{\partial^2 \tilde{\rho}}{\partial \tilde{x}^2} + \frac{\partial^2 \tilde{\rho}}{\partial \tilde{z}^2} = 0 \quad (2.12)$$

with the two boundary conditions

$$(1 + \chi \tilde{h})(\mathbf{n} \cdot \tilde{\nabla})\tilde{\rho}|_{\text{int}} = Pe_k \tilde{\rho}|_{\text{int}} \quad \text{and} \quad \lim_{\tilde{z} \rightarrow +\infty} \frac{\partial \tilde{\rho}}{\partial \tilde{z}} = -1. \quad (2.13)$$

where $Pe_k = v_{\text{th}} H/D$ is a *kinetic Péclet number* and $\chi = H v_{\text{th}} (\mathcal{L}_v / \kappa) (d\rho^{\text{eq}}/dT)$ is called the *thermal expansion number*.

The evaporation rate is given by

$$\tilde{J} = -(\mathbf{n} \cdot \tilde{\nabla})\tilde{\rho}|_{\text{int}} \quad (2.14)$$

which is the non-dimensional version of (2.8).

2.6. The one-sided limit

The evolution equation given by Burelbach *et al.* (1988) and Oron *et al.* (1997) can be recovered as a particular limit of our model. The case of no diffusion corresponds to the limit of small Pe_k . Introducing a new scaling for the density $\hat{\rho} = \tilde{\rho} Pe_k / \chi$, we find that $\hat{\rho}$ satisfies the Laplace equation (2.12) with the boundary conditions

$$\tilde{J}(1 + \chi \tilde{h}) = -\chi \hat{\rho}|_{\text{int}} \quad \text{and} \quad \lim_{\tilde{z} \rightarrow +\infty} \frac{\partial \hat{\rho}}{\partial \tilde{z}} = -\frac{Pe_k}{\chi}. \quad (2.15)$$

In the limit $Pe_k \rightarrow 0$, the boundary condition at infinity yields a uniform density distribution $\hat{\rho} = \text{Const}$. The lubrication equation is

$$\frac{\partial \tilde{h}}{\partial \tilde{t}} + \frac{1}{Ca} \frac{\partial}{\partial \tilde{x}} \left\{ \frac{\tilde{h}^3}{3} \frac{\partial}{\partial \tilde{x}} \left[\frac{\partial^2 \tilde{h}}{\partial \tilde{x}^2} + \Lambda \left(\frac{\hat{\rho}}{\chi(1 + \chi \tilde{h})} \right)^2 \right] - Ma \frac{\tilde{h}^2}{2} \frac{\partial}{\partial \tilde{x}} \left(\frac{\tilde{h} \hat{\rho}}{\chi(1 + \chi \tilde{h})} \right) \right\} = \frac{\hat{\rho}}{\chi(1 + \chi \tilde{h})} \quad (2.16)$$

where J has been eliminated using (2.15). Equation (2.16) is the same as the equation obtained by Burelbach *et al.* (1988) up to a choice in scalings, when omitting the disjoining pressure term.

2.7. The pure diffusion limit

We now consider the opposite limit $Pe_k \rightarrow \infty$ which we refer to as the *diffusion-limited regime*. The boundary conditions (2.13) for the Laplace problem (2.12) become

$$\tilde{\rho}|_{\text{int}} = 0 \quad \text{and} \quad \lim_{\tilde{z} \rightarrow +\infty} \frac{\partial \tilde{\rho}}{\partial \tilde{z}} = -1. \quad (2.17)$$

It appears that the gas is saturated in vapour immediately above the interface (in dimensional quantities, $\rho|_{\text{int}} = \rho^{\text{eq}}(T_{\text{subs}})$) and that evaporation is limited by diffusion. This boundary condition was used in the study of evaporating droplets by Deegan *et al.* (1997, 1999), Poulard *et al.* (2003) and Cachile *et al.* (2002). The Laplace problem has an electrostatic equivalent: that of finding the electric potential (ρ) with an imposed electric field (\mathbf{J}_0) at infinity and a fixed constant potential on a deformed plane. The sharp-edge effect implies a larger evaporation rate at crests which tends to restore the flat state so evaporation is a stabilizing mechanism in the diffusion-limited regime.

2.8. Discussion

The evaluation of the relevant dimensionless parameters for water and different alkanes (table 2) shows that the limits $Pe \rightarrow 0$, $\theta \rightarrow 0$ and $\Lambda \rightarrow 0$ are reasonable. The smallness of the Péclet number Pe ensures that the time needed to build up the concentration profile above the film is much smaller than the characteristic time for the motion of the interface, so that stationary diffusion is a good approximation. The smallness of the reduced temperature θ allows a linear approximation for the gas density at the interface. The relevant physics is therefore contained in the values of the capillary, the Marangoni, the kinetic Péclet and the thermal expansion numbers (Ca , Ma , Pe_k , χ). Other mechanisms, such as molecular interactions, are neglected.

The closed system to be studied consists of the lubrication equation (2.11) coupled to a Laplace problem (2.12), (2.13). This unusual coupling comes from evaporation which relates the film mass loss to the gradient of the vapour concentration. This induces non-locality in the lubrication equation as the mass loss is a function of the whole shape of the interface. To simplify notation, from now on we drop the tildes for the rescaled variables.

3. Stability of the flat interface

Equations (2.11), (2.12) have as solution for the film thickness $h(x, t) = 1 - t$ and gas density $\rho(x, z, t) = -z + C - (1 - \chi/Pe_k)t$ with $C = (Pe_k - 1 - \chi)/Pe_k$. As this base state is non-stationary, linearization of the equations gives a non-autonomous partial differential equation, so that standard linear stability (modal) analysis should not apply. For simplicity, we assume from now on that the base state is $h(x, t) = 1$ and $\rho(x, z, t) = -z + C$, which amounts to adding a volume source v_{ev} to right-hand side of equation (2.1), as this source compensates exactly for the loss of mass at infinity. This also amounts to a quasi-steady approximation for which evaporation is sufficiently slow that the thickness of the layer remains approximately constant during the growth of unstable modes.

3.1. Full linear stability analysis

We study the stability of the flat state by seeking solutions of equations (2.11), (2.14) in the form

$$h = 1 + \delta h, \quad \rho = C - z + \delta \rho, \quad J = 1 + \delta J.$$

After linearization, those equations admit Fourier-mode solutions of wavenumber k and growth rate Ω : $\delta h = A e^{\Omega t} e^{ikx} + \text{c.c.}$ (c.c. stands for the complex conjugate of the preceding term); we now compute the corresponding $\delta \rho$ and δJ . To begin with, as a harmonic function, $\delta \rho$ has to be of the form $B e^{ikx} e^{-|k|z} + \text{c.c.}$ (B is a complex-valued function of k), where the absolute value must be taken in order to ensure vanishing $\delta \rho$ at $z \rightarrow +\infty$. The boundary condition (2.13) at the interface gives at linear order

$$\delta \rho|_{z=1} = \frac{Pe_k - \chi}{|k|(\chi + 1) + Pe_k} \delta h.$$

Hence, we can compute $B(k)$:

$$\delta \rho = \frac{Pe_k - \chi}{|k|(\chi + 1) + Pe_k} \delta h e^{-|k|(z-1)} + \text{c.c.}$$

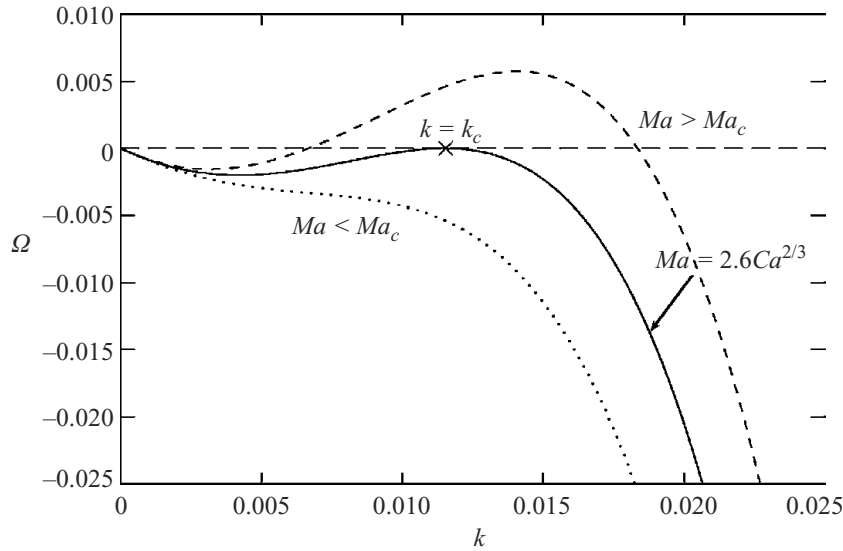


FIGURE 2. Diffusion-limited regime: growth rate Ω of the mode of wavenumber k (dimensionless quantities) for three typical value of the Marangoni number Ma . We have chosen here a capillary number $Ca = 10^{-6}$.

From (2.14) we obtain the perturbed evaporation rate $\delta J = -(\partial/\partial z)\delta\rho|_{z=1}$. Plugging this in (2.11) and dropping nonlinear contributions gives the dispersion relation:

$$\Omega(k) = -\frac{1}{3Ca}k^4 + \frac{Ma}{2Ca}k^2 - |k|\frac{Pe_k - \chi}{|k|(\chi + 1) + Pe_k}. \quad (3.1)$$

$\Omega(k)$ is growth rate of the wavenumber k ; if $\Omega(k) > 0$, then the perturbation grows and the corresponding mode is unstable. Evaporation can either stabilize or destabilize large wavelengths depending on the values of Pe_k and χ whereas capillarity stabilizes short wavelengths; the Marangoni effect drives the instability.

3.2. Transfer-rate-limited regime: linear stability analysis

In the limit $Pe_k \ll \min\{\chi, k, k\chi\}$, corresponding to the one-sided model, the dispersion relation (3.1) becomes

$$\Omega(k) = -\frac{1}{3Ca}k^4 + \frac{Ma}{2Ca}k^2 + \frac{\chi}{1 + \chi}, \quad (3.2)$$

meaning that the film is always unstable. This limit was studied in detail by Burelbach *et al.* (1988). In fact, it is a singular limit (the base state has a different form), and spurious effects arise at $k=0$: equation (3.2) predicts exponential growth of a constant change in the film thickness. Accounting for the time dependence of the base state as done by Burelbach *et al.* (1988) corrects this artifact (it yields in particular $\Omega(0)=0$) but does not change the unstable behaviour. Note that such spurious effects do not arise for the general case corresponding to (3.1) for which $\Omega(0)=0$.

3.3. Diffusion-limited regime: linear stability analysis

We now consider the opposite limit $Pe_k \gg \max\{\chi, k\}$ which is reasonable given the experimental parameters. In this regime the dispersion relation (3.1) becomes

$$\Omega(k) = -\frac{1}{3Ca}k^4 + \frac{Ma}{2Ca}k^2 - |k|. \quad (3.3)$$

The last term shows again that evaporation stabilizes long wavelengths in this regime (figure 2). The absolute value of the wavenumber k comes from quasi-static diffusion.

Such a non-analyticity in the dispersion relation is well-known in the context of diffusive growth (see e.g. Langer 1980). The relevant control parameters are the capillary and Marangoni numbers. Suppose that Ca is fixed; when the Marangoni number Ma is small, there is no unstable mode. The first unstable wavenumber k_c (marginally stable mode) appears when the Marangoni number reaches a critical value Ma_c such that $\Omega(k=k_c)=0$ and $(d/dk)\Omega(k=k_c)=0$. Solving this system, we obtain,

$$\left. \begin{aligned} Ma_c &= 18^{1/3} Ca^{2/3}, \\ k_c^2 &= \frac{Ma_c}{2} \end{aligned} \right\} \quad (3.4)$$

for the critical parameters at the threshold.

The relevance of these results to the experiments is examined in the last section.

3.4. Diffusion-limited regime: weakly nonlinear analysis

The preceding linear stability analysis shows that the system may become unstable; it gives the most unstable wavelength and the instability threshold. However, predicting the nature of the transition or the observed patterns requires a more refined treatment. For instance, if the transition is discontinuous, the pattern might be very different from the linearly most unstable mode. This is why we perform a weakly nonlinear analysis close to the critical point. It is restricted to the diffusion-limited regime (equations (2.11) and 2.12), (2.17).

In this analysis, nonlinear contributions to the evaporation rate are needed; they are computed in Appendix A:

$$\begin{aligned} J[h] = 1 - \frac{\partial}{\partial x} \mathcal{H}[h] + \left\{ \frac{1}{2} \left(\frac{\partial h}{\partial x} \right)^2 + \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} h + \frac{\partial}{\partial x} \mathcal{H} \left(h \frac{\partial}{\partial x} \mathcal{H}[h] \right) \right\} \\ + \left\{ \frac{1}{2} \left(\frac{\partial h}{\partial x} \right)^2 \mathcal{H} \left[\frac{\partial h}{\partial x} \right] - \frac{1}{2} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \left(h^2 \frac{\partial}{\partial x} \mathcal{H}[h] \right) - 2h \frac{\partial h}{\partial x} \mathcal{H} \left[\frac{\partial^2 h}{\partial x^2} \right] \right. \\ \left. - \frac{\partial}{\partial x} \mathcal{H} \left(h \frac{\partial}{\partial x} \mathcal{H} \left(h \frac{\partial}{\partial x} \mathcal{H}[h] \right) \right) - \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial x} \mathcal{H} \left[h^2 \frac{\partial^2 h}{\partial x^2} \right] \right\} + O(h^4), \end{aligned} \quad (3.5)$$

where \mathcal{H} is the Hilbert transform (Appendix B). Each successive correction to the base state is an integro-differential transform of the interface profile h ; this comes from the non-local nature of the Laplace problem.

We use a multi-scale expansion which is valid when the spatial Fourier spectrum of $h(x, t)$ is concentrated around k_c (see e.g. Manneville 1990). We look for an equation of evolution for the slowly varying function $A(X, T)$ such that $h(x, t) = A(X, T) \exp(ik_c x) + \text{c.c.}$ Formally, we use ϵ as an expansion parameter. We assume that h is a function of both the fast scales x, t and the slow scales $X = \epsilon x$, $T = \epsilon^2 t$. This choice for the slow scales is the natural one given that $\Omega(k)$ is maximum at k_c . We consider the neighbourhood of the marginal stability and we rescale the control parameter as

$$\Omega(k_c) = \epsilon^2 \omega(k_c).$$

From the chain rule for differentiation, we make the replacements

$$\partial_x \rightarrow \partial_x + \epsilon \partial_X, \quad \partial_t \rightarrow \partial_t + \epsilon^2 \partial_T.$$

We also assume that h can be expanded as

$$h(x, t) = 1 + \epsilon h_1(x, t) + \epsilon^2 h_2(x, t) + \dots$$

The procedure to obtain the amplitude equation (equation for $A(X, T)$) is quite standard and is detailed in Appendix C. However the present case has the peculiarity that the expansion must be pursued up to order 6 as h_1 is found to vanish. This is due to the coupling between the evaporation rate and the $k=0$ eigenmodes of the linearized evolution operator.

Taking the rescalings $X \rightarrow X/k_c$ and $T \rightarrow T/k_c$, neglecting terms of order k_c^2 and higher which is consistent with lubrication theory, the amplitude equation becomes

$$\begin{aligned} \frac{\partial A}{\partial T} = & \sigma A + \frac{3}{2} \frac{\partial^2 A}{\partial X^2} - 2i \frac{\partial^3 A}{\partial X^3} - \frac{1}{2} \frac{\partial^4 A}{\partial X^4} - \frac{45}{8} |A|^2 A \\ & + \frac{3}{2} k_c A \left\{ \mathcal{H} \iint \left(\left\{ \sigma - \frac{\partial}{\partial T} \right\} \mathcal{H} + \frac{\partial}{\partial X} \right) |A|^2 + 2i \int \mathcal{H} \left[A \frac{\partial \bar{A}}{\partial X} \right] - 4i \mathcal{H} [|A|^2] \right\} \end{aligned} \quad (3.6)$$

the control parameter being

$$\sigma = -2 \frac{Ca - Ca_c}{Ca_c} + \frac{3}{2} \frac{Ma - Ma_c}{Ma_c}. \quad (3.7)$$

As far as we are aware, this non-local kind of amplitude equation has not been derived before. The non-local terms are important for large-amplitude patterns or for finite size systems.

The solution $A=0$ of the amplitude equation becomes unstable when $\sigma > 0$ (which is consistent with the linear stability). When $\sigma > 0$, there are stationary solutions of the form $A(X, T) = A_0 \exp(iQX)$ with $\sigma = \frac{45}{8} |A_0|^2 + \frac{3}{2} Q^2 + 2 Q^3 + \frac{1}{2} Q^4$. They correspond to a stationary pattern with thickness fluctuation $h(x, t) = A_0 \exp\{i(k_c + Q)x\}$, which is modulated around the critical wavenumber k_c . Thus, as the prefactor of $|A|^2 A$ is negative, the transition from the flat state ($A=0$) to a state with height fluctuations is a supercritical (continuous) pitchfork bifurcation in contrast to the studies of Krishnamoorthy, Ramaswamy & Joo (1995), VanHook *et al.* (1997) or Thiele & Knobloch (2004) on heated fluid layers.

4. Discussion

4.1. Transfer-rate-limited versus diffusion-limited evaporation

We obtained (2.9) as a boundary condition prescribed at the interface combining both the transfer rate across the interface and the diffusion of the vapour in the gas phase. This boundary condition might be simplified in two distinct limits according to the values of the kinetic Péclet number and the thermal expansion number. These two limits have been used separately in the literature; however, it has been overlooked that they fall within a general framework, although Margerit *et al.* (2003) have treated vapour diffusion in the case of no evaporation.

In the first limit, $Pe_k \ll \min\{\chi, k, k\chi\}$, the evaporation process is limited by the transfer of molecules across the interface. The diffusion of the vapour can be ignored and the classical Hertz–Knudsen (2.7) relation gives the evaporation rate. It is worth noting here that transfer-limited evaporation is always destabilizing: if the free surface undergoes a small shape perturbation, liquid portions that are closer to (resp. farther from) the substrate evaporate faster (resp. slower) and the disturbance is amplified. The so-called one-sided models for evaporating layers (Prosperetti & Plesset 1984; Burelbach *et al.* 1988; Samid-Merzel *et al.* 1998; Lyushnin *et al.* 2002; Margerit *et al.*

	Ca	Ma	$Ma_c(Ca)$	Ma_c/Ma
Water	5.90×10^{-9}	6.66×10^{-7}	8.59×10^{-6}	12.9
Nonane	5.94×10^{-9}	2.89×10^{-7}	8.60×10^{-6}	30
Octane	1.4×10^{-8}	1.10×10^{-6}	1.52×10^{-5}	13.8
Heptane	4.19×10^{-8}	3.76×10^{-6}	3.16×10^{-5}	8.4
Hexane	1.11×10^{-7}	1.33×10^{-5}	6.05×10^{-5}	4.55

TABLE 3. Values of the control parameters (Ca , Ma) for different volatile fluids and comparison with the instability threshold in the diffusion limited regime.

2003; Merkt & Bestehorn 2003) correspond to this limit as they do not consider the dynamics of the gas phase and so discard vapour diffusion.

In the second limit, $Pe_k \gg \max\{\chi, k\}$, the evaporation process is limited by the diffusion of the vapour in the gas phase. The gas phase is saturated in vapour immediately above the interface and the evaporation flux is given by the Fick relation (2.8). The electrostatic analogue of the Laplace problem for the vapour density, and the related sharp-edge effect (Deegan *et al.* 1997) show that the evaporation rate is larger at bumps hence diffusion-limited evaporation is stabilizing. The study of evaporating droplets by Deegan *et al.* (1999) and Cachile *et al.* (2002) fall within this approximation.

It appears that this second limit is of wide validity. Indeed, the ratio Pe_k/χ which depends only on the nature of the fluid is the range 4–70 for the fluids considered here, whereas $Pe_k > 1$ (a more restrictive condition) once the thickness is larger than $D/v_{th} \sim 0.1 \mu\text{m}$, which is the thickness scale determined by the diffusivity of vapour D and the thermal velocity v_{th} .

4.2. Comparison with experiments on evaporating droplets

We turn now to the experimental relevance of our analysis. Despite the number of theoretical studies on evaporating thin films, very few experiments have been conducted. Redon *et al.* (1992), Kavehpour *et al.* (2002) and Poulard *et al.* (2003) observed instabilities in the form of evaporating droplets. In the first set of experiments (Kavehpour *et al.* 2002; Redon *et al.* 1992), the spreading of drops of silicon oils was studied. As silicon oils have a very low volatility, evaporation rate is small and the shear stress associated with the spreading is important. In the second set of experiments (Poulard *et al.* 2003) evaporation sets the velocity scale. This is why we focus on this latter set. We stress that the geometry of a droplet is different from that of a constant-thickness film analysed in this paper so that only a semi-quantitative comparison between the experiments and the present theory is possible.

Poulard *et al.* (2003) studied receding evaporating drops of water and alkanes on smooth substrates. The data in tables 1 and 2 corresponds to this experimental situation. For water, heptane and hexane the drop loses its axisymmetry and develops a regular wavy pattern near the contact line: the height fluctuates with a well-defined wavenumber. Instabilities are observed neither with octane nor nonane. We now compare with the stability analysis in the diffusion-limited regime (3.4). This comparison requires the choice of a thickness lengthscale; we retain the typical thickness of the unstable region, $h \sim 200 \text{ nm}$. We estimate the typical evaporation rate in this zone using $J(r) = J_0/\sqrt{1-(r/R)^2}$ (Deegan *et al.* 1999), where R is the drop radius and r is the distance to the drop axis. In the experiments, the radius R is of order 0.5 mm and the size of the unstable zone is $R - r \sim 5 \mu\text{m}$. According to table 3

droplets of all fluids are stable. Because of the difference in geometries we cannot draw conclusions directly on the stability. We can only compare the relative values of the ratio Ma_c/Ma between different fluids. This ratio is of order one, meaning that the distance to the threshold is small. Moreover, the fluids can be sorted from the less stable to the most stable as: hexane, heptane, water, octane and nonane. This compares well with the experiments: festoon patterns have been observed with hexane, heptane and water and none with octane and nonane. However, caution should be taken with water as evaporating droplets of water have an anomalous retraction velocity (Poulard *et al.* 2003). Equation (3.4) gives as wavelengths $\lambda_{\text{Heptane}} \simeq 320 \mu\text{m}$ and $\lambda_{\text{Water}} \simeq 600 \mu\text{m}$ which are an order of magnitude larger than the experimental $\lambda_{\text{Heptane}} \simeq 50 \mu\text{m}$ and $\lambda_{\text{Water}} \simeq 30 \mu\text{m}$. To summarize, the comparison with experiments is satisfying as we predict an instability threshold, in contrast to the one-sided model (see §3.2), and we find that the stability increases with the weight of the alkane.

4.3. Main results

In this paper, we have constructed a two-sided model for evaporating thin liquid films. In order to predict quantitatively the evaporation rate, we have considered both transfer rate across the interface and diffusion of the vapour in the gas phase. The experiments of Poulard *et al.* (2003) motivated the study of the regime for which evaporation is diffusion-limited. In this context, the system describing the evolution of the height profile h couples the lubrication of the substrate by the thin film to the diffusion of its vapour in the gas phase. Using a linear stability analysis, we predicted an instability threshold and classified the stability for different liquids, in agreement with the experiments. The results of the linear stability analysis are not too different from Poulard *et al.*'s (2003) experiments on evaporating droplets. To push the comparison further, it would be interesting to perform experiments on extended flat films. The weakly nonlinear analysis lead to the prediction of a continuous transition from the flat state, so that the formation of dry patches is not expected in the diffusion-limited regime.

Moreover, the diffusion equation confers a non-local aspect on the dynamics of the film which is found to persist in the amplitude equation (3.6) established within a weakly nonlinear study. This property was unexpected and contrasts with Friedrich's & Engel's (2003) results on the Rosensweig instability of magnetic fluids; it originates from the presence of uniform profiles in the null-space of the linearized evolution operator (see Appendix C).

This study suggests investigation of more complicated situations such as when both transfer rate and diffusion of the vapour are important (i.e. when Pe_k has a finite value), in the nonlinear regime. As analytical extensions to the present study seem difficult, numerical computations of the complete two-sided model would allow the investigation of effects such as the non-stationarity of the base state, the finite extent of the system, three-dimensional patterns or the geometry of a droplet. Consequences of the non-local terms would also be interesting to study further.

We are very grateful to Anne-Marie Cazabat and Christophe Poulard for exciting our interest in the stability of evaporating droplets.

Appendix A. The evaporative flux; electrostatic analogy

This Appendix is devoted to the perturbative treatment of the Laplace problem associated with the diffusion-limited regime

$$\begin{aligned}\nabla^2 \rho &= 0 & (z > h(x)), \\ \rho(x, h(x)) &= 0, \\ \frac{\partial \rho}{\partial z}(x, z = +\infty) &= -1,\end{aligned}$$

where $h = h(x)$ is a given regular (bounded and differentiable) function. Precisely, we need to compute $-(\mathbf{n} \cdot \nabla)\rho|_{z=h(x)+}$.

A.1. Vortex sheet formalism

Using electrostatic terminology, the problem is to find the electric field \mathbf{J} immediately above a deformed charged plane. Introducing a superficial charge distribution $\rho = \sigma(x)\delta(z - h(x))$ ($\delta(z - a)$ is a Dirac mass concentrated at the point $z = a$), one can write the integral representation:

$$\mathbf{J}(x, z) = \int \sigma(x') \frac{(x - x')\mathbf{e}_x + (z - h(x'))\mathbf{e}_z}{(x - x')^2 + (z - h(x'))^2} d\ell(x') \quad (z \neq h(x)), \quad (\text{A } 1)$$

$d\ell = \sqrt{1 + h'(x)^2} dx$ being the arc-length element and $h'(x) = (dh/dx)(x)$.

At the interface, two boundary conditions are prescribed. To begin with, according to Gauss theorem, the field has a normal discontinuity

$$(\mathbf{J}^+ - \mathbf{J}^-) \cdot \mathbf{n} = 2\pi\sigma \quad (\text{A } 2)$$

where \mathbf{J}^+ (resp. \mathbf{J}^-) stands for the field just above (resp. below) the interface $z = h(x)$. Moreover, the tangential component has to vanish in order to fulfil the condition $\rho(x, h(x)) = 0$:

$$\mathbf{J}^+ \cdot \mathbf{t} = \mathbf{J}^- \cdot \mathbf{t} = 0. \quad (\text{A } 3)$$

Now, setting $z = h(x)$ in (A 1), one has to take the Cauchy principal value (denoted as PV) of the integral in order to get a well-defined expression. This regularized integral is equal to the half-sum of \mathbf{J}^+ and \mathbf{J}^- so that the conditions (A 2), (A 3) may be rewritten as

$$\mathbf{J}^+ = \pi\sigma + \frac{1}{\sqrt{1 + h'(x)^2}} \text{PV} \int \frac{\sigma(x')}{x - x'} \frac{-h'(x) + \phi(x, x')}{1 + \phi(x, x')^2} d\ell(x') \quad (\text{A } 4)$$

and

$$\text{PV} \int \frac{\sigma(x')}{x - x'} \frac{1 + h'(x)\phi(x, x')}{1 + \phi(x, x')^2} d\ell(x') = 0 \quad (\text{A } 5)$$

with $\phi(x, x') = (h(x) - h(x'))/(x - x')$ and $\mathbf{J}^+ = \mathbf{J}^+ \cdot \mathbf{n} = \|\mathbf{J}^+\|$.

A.2. Perturbative treatment

The general relation (A 5) implicitly gives the superficial charge σ as a function of h . Since the inversion is not possible analytically, we assume that the deflection from the flat plane h is weak; we introduce a small parameter η such that h is replaced by ηh (a possible choice is to set $\eta = \sup_x |h(x)|$) and write a perturbative expansion $\sigma = \sigma^{(0)} + \eta\sigma^{(1)} + \eta^2\sigma^{(2)} + \dots$. The $\eta = 0$ contribution corresponds to the plane interface for which the field is uniform; the boundary condition $\mathbf{J}(x, z = +\infty) = \mathbf{J}^{(0)}\mathbf{e}_z$

readily gives $\sigma^{(0)} = J^{(0)}/\pi$. Solving (A 5) up to $O(\eta^4)$, we find

$$\sigma[h] = \frac{J^{(0)}}{\pi} \left(1 + \eta^2 \left\{ \frac{1}{2} \left(\frac{dh}{dx} \right)^2 + h \frac{d^2h}{dx^2} + \frac{d}{dx} \mathcal{H} \left[h \frac{d}{dx} \mathcal{H}[h] \right] \right\} + O(\eta^4) \right) \quad (\text{A } 6)$$

where \mathcal{H} is the Hilbert transform (see Appendix B).

The remaining step is simply to plug (A 6) into (A 4). Without having to compute further terms for $\sigma(x)$, we can express the evaporative flux expansion up to $O(h^4)$. Setting $\eta = 1$, we find

$$\begin{aligned} J[h] = & 1 - \frac{d}{dx} \mathcal{H}[h] + \left\{ \frac{1}{2} \left(\frac{dh}{dx} \right)^2 + \frac{d^2h}{dx^2} h + \frac{d}{dx} \mathcal{H} \left(h \frac{d}{dx} \mathcal{H}[h] \right) \right\} \\ & + \left\{ \frac{1}{2} \left(\frac{dh}{dx} \right)^2 \mathcal{H} \left[\frac{dh}{dx} \right] - \frac{1}{2} \frac{d^2}{dx^2} \left(h^2 \frac{d}{dx} \mathcal{H}[h] \right) - 2h \frac{dh}{dx} \mathcal{H} \left[\frac{d^2h}{dx^2} \right] \right. \\ & \left. - \frac{d}{dx} \mathcal{H} \left(h \frac{d}{dx} \mathcal{H} \left(h \frac{d}{dx} \mathcal{H}[h] \right) \right) - \frac{1}{2} \frac{d}{dx} \mathcal{H} \left[h^2 \frac{d^2h}{dx^2} \right] \right\} + O(h^4), \end{aligned}$$

that is, formula (3.5).

Appendix B. Hilbert transform

B.1. Definition and basic properties

Given a bounded function $f(x)$, we define the Hilbert transform with the usual conventions:

$$\mathcal{H}[f](x) = \frac{1}{\pi} \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} \int_{|x-x'| > \varepsilon} dx' \frac{f(x')}{x' - x}$$

where we have taken the Cauchy principal value (symmetric limit) at $x' = x$. Useful properties are commutation with linear differential operators and the inversion relation $\mathcal{H}^{-1} = -\mathcal{H}$. With this definition, the Hilbert transform is not defined for constant functions. However, one can remove the divergence at infinity by taking the principal values both at x and at infinity; the result is then $\mathcal{H}[\text{Const}] = 0$. (Note that the inversion formula is not valid for constants.)

B.2. Hilbert transform and slow space-varying amplitude

In the weakly nonlinear analysis, we have to compute quantities of the form $\mathcal{H}[A(\epsilon x) e^{ikx}]$, with $0 < \epsilon \ll 1$. We want here to show that, to a very good precision (for ϵ sufficiently small), we have the relation

$$\mathcal{H}[A(\epsilon x) e^{ikx}] = A(\epsilon x) \mathcal{H}[e^{ikx}] \quad (k \neq 0) \quad (\text{B } 1)$$

which means that the action of the Hilbert transform on a slowly modulated Fourier mode does not introduce, except if $k = 0$, non-localities (see Friedrichs & Engel 2003). In the next Appendix, we make substantial use of this property.

Since $A_\epsilon(x) = A(\epsilon x)$ varies significantly only if x has a variation of order $1/\epsilon$, the Fourier transform \hat{A}_ϵ of A_ϵ must be negligible outside $(-\epsilon, \epsilon)$.

Let us first assume that the support of \hat{A}_ϵ (that is, the domain where it has non-zero values) is included in $(-\epsilon, \epsilon)$. Then, using $\mathcal{H}[e^{ikx}] = i \operatorname{sgn}(k) e^{ikx}$ ($\operatorname{sgn}(k) = 1$ if $k > 0$), we have

$$\mathcal{H}[A_\epsilon(x) e^{ikx}] = i e^{ikx} \int_{-\epsilon}^{\epsilon} dk' \hat{A}_\epsilon(k') \operatorname{sgn}(k' + k) e^{ik'x}.$$

Thus, (B 1) is proved if we suppose $|k| > \epsilon$, that is, if ϵ is small enough.

If $\hat{A}_\epsilon = 0$ does not vanish outside using $(-\epsilon, \epsilon)$, one can show that, using the same hypothesis on k , to the first order in ϵ , the error on (B 1) is of the order of $\int_{1/\epsilon}^{\infty} |\hat{A}(k)| dk$.

Appendix C. Weakly nonlinear analysis

Here we detail the weakly nonlinear analysis leading to the amplitude equation (3.6). We consider the neighbourhood of the stability limit, so that we rescale the control parameter according to

$$\Omega(k_c) = \epsilon^2 \omega(k_c). \quad (\text{C } 1)$$

Plugging (3.5) into the lubrication equation (2.11), we obtain a closed integro-differential equation for the height profile h . We assume that h is a function of x, X, t, T (fast and slow scales) and admits the expansion $h = \epsilon h^{(1)} + \epsilon^2 h^{(2)} + \dots$. The derivatives are substituted according to

$$\partial_x \rightarrow \partial_x + \epsilon \partial_X, \quad \partial_t \rightarrow \partial_t + \epsilon^2 \partial_T. \quad (\text{C } 2)$$

It is convenient to separate the evolution operator into its linear contributions \mathcal{L} and nonlinear ones \mathcal{N} . In particular, applying transformations (C 2) leads to the expansion $\mathcal{L} = \mathcal{L}_c + \epsilon \mathcal{L}^{(1)} + \epsilon^2 \mathcal{L}^{(2)} + \epsilon^3 \mathcal{L}^{(3)} + \epsilon^4 \mathcal{L}^{(4)}$ with

$$\begin{aligned} \mathcal{L}_c &= \frac{1}{3Ca} \partial_x^4 + \frac{Ma}{2Ca} (\partial_x^2 - \partial_x^3 \mathcal{H}) - \partial_x \mathcal{H}, \\ \mathcal{L}^{(1)} &= \left\{ \frac{4}{3Ca} \partial_x^3 + \frac{Ma}{2Ca} (2\partial_x - 3\partial_x^2 \mathcal{H}) - \mathcal{H} \right\} \partial_X, \\ \mathcal{L}^{(2)} &= \left\{ \frac{2}{Ca} \partial_x^2 + \frac{Ma}{2Ca} (1 - 3\partial_x \mathcal{H}) \right\} \partial_X^2 - \omega(k_c) + \partial_T, \\ \mathcal{L}^{(3)} &= \left\{ \frac{4}{3Ca} \partial_x - \frac{Ma}{2Ca} \mathcal{H} \right\} \partial_X^3, \\ \mathcal{L}^{(4)} &= \frac{1}{3Ca} \partial_X^4. \end{aligned}$$

Note that the null-space of \mathcal{L}_c contains slow space-varying height profiles (i.e. functions of X). We now proceed to the solution order by order.

Order ϵ^1 :

We have simply

$$\mathcal{L}_c h^{(1)} = 0. \quad (\text{C } 3)$$

Using (B 1), the solution is

$$h^{(1)} = (A_{11}(X, T) e^{ik_c x} + \text{c.c.}) + A_{10}(X, T)$$

k_c being the critical wavenumber given by the linear stability analysis.

Order ϵ^2 :

The equation has the form

$$\mathcal{L}_c h^{(2)} = -\mathcal{L}^{(1)} h^{(1)} - \mathcal{N}^{(2)}(h^{(1)}). \quad (\text{C } 4)$$

The nonlinear term contains a $k=0$ mode. As the right-hand side of (C 4) must be orthogonal to the null space of \mathcal{L}_c , this implies $h^{(1)} = 0$. Thus, $\mathcal{L}_c h^{(2)} = 0$, hence $h^{(2)} = (A_{21}(X, T) e^{ik_c x} + \text{c.c.}) + A_{20}(X, T)$.

Order ϵ^3 :

$\mathcal{N}^{(3)} = 0$ as $h^{(1)} = 0$:

$$\mathcal{L}_c h^{(3)} = -\mathcal{L}^{(1)} h^{(2)}. \quad (\text{C } 5)$$

Again, the right-hand side of (C 5) has to be orthogonal to the null space of \mathcal{L}_c , so we have $A_{20} = 0$. Hence, $h^{(3)} = (A_{31}(X, T) e^{ik_c x} + \text{c.c.}) + A_{30}(X, T)$.

Order ϵ^4 :

$$\mathcal{L}_c h^{(4)} = -\mathcal{L}^{(2)} h^{(2)} - \mathcal{L}^{(1)} h^{(3)} - \mathcal{N}^{(4)}(h^{(2)}). \quad (\text{C } 6)$$

The nonlinear term is

$$\mathcal{N}^{(4)}(h^{(2)}) = (f_4 A_{21}^2 e^{2ik_c x} + \text{c.c.}) - k_c^2 A_{21} \overline{A_{21}}$$

with $\overline{A_{21}}$ is the complex conjugate of A_{21})

$$f_4(k_c) = \frac{Ma}{Ca} (-2k_c^2 - k_c^4 - 4k_c^3) + \frac{2k_c^4}{Ca} + \frac{1}{2}k_c^2.$$

So, introducing

$$\alpha = \left(-\frac{2}{Ca} k_c^2 + \frac{Ma}{2Ca} (1 + 3k_c) \right),$$

we have from (C 6)

$$-\partial_X \mathcal{H}[A_{30}] = k_c^2 |A_{21}|^2, \quad (\text{C } 7)$$

$$-\omega(k_c) A_{21} + \alpha \partial_X^2 A_{21} + \partial_T A_{21} = 0. \quad (\text{C } 8)$$

The solution to (C 6) is

$$h_4 = (A_{42}(X, T) e^{2ik_c x} + \text{c.c.}) + (A_{41}(X, T) e^{ik_c x} + \text{c.c.}) + A_{40}(X, T)$$

with $A_{42} = f_4(k_c)/\Omega(2k_c)A_{21}^2$.

Order ϵ^5 :

$$\mathcal{L}_c h^{(5)} = -\mathcal{L}^{(3)} h^{(2)} - \mathcal{L}^{(2)} h^{(3)} - \mathcal{L}^{(1)} h^{(4)} - \mathcal{N}^{(5)}(h^{(2)}, h^{(3)}). \quad (\text{C } 9)$$

It is convenient to decompose the nonlinear term:

$$\mathcal{N}^{(5)}(h^{(2)}) = (\mathcal{N}_{52} e^{2ik_c x} + \text{c.c.}) + (\mathcal{N}_{51} e^{ik_c x} + \text{c.c.}) + \mathcal{N}_{50},$$

where

$$\mathcal{N}_{52} = f_5 A_{31} A_{21} + ig_5 \partial_X A_{21}^2,$$

$$\mathcal{N}_{51} = j_5 A_{30} A_{21},$$

$$\mathcal{N}_{50} = -k_c^2 A_{21} \overline{A_{31}} - ik_c A_{21} \partial_X \overline{A_{21}} - k_c \mathcal{H} [\overline{A_{21}} \partial_X A_{21}] + \text{c.c.}$$

and with

$$f_5(k_c) = \frac{Ma}{Ca} (-8k_c^3 - 2k_c^4 - 4k_c^2) + \frac{4k_c^4}{Ca} + k_c^2,$$

$$g_5(k_c) = \frac{Ma}{Ca} (2k_c + 2k_c^3 + 6k_c^2) - \frac{4k_c^3}{Ca} - \frac{k_c}{2},$$

$$j_5(k_c) = \frac{Ma}{Ca} \left(-\frac{3}{2}k_c^3 - k_c^2 \right) + \frac{k_c^4}{Ca}.$$

Imposing again that the restriction of the right-hand side of (C 9) to the null space of \mathcal{L}_c has to vanish and using (C 7), we obtain

$$i\beta\partial_X^3 A_{21} + \{\alpha\partial_X^2 - \omega(k_c) + \partial_T\} A_{31} + j_5 A_{21} \int \mathcal{H}[|A_{21}|^2] = 0 \quad (\text{C } 10)$$

and

$$\partial_X \mathcal{H}[A_{40}] = (-\omega(k_c) + \partial_T) A_{30} + \frac{Ma}{2Ca} \partial_X^2 A_{30} + \mathcal{N}_{50}, \quad (\text{C } 11)$$

with

$$\beta = \frac{4}{3Ca} k_c - \frac{Ma}{2Ca}.$$

The solution at this order is

$$h_5 = (A_{52}(X, T) e^{2ik_c x} + \text{c.c.}) + (A_{51}(X, T) e^{ik_c x} + \text{c.c.}) + A_{50}(X, T)$$

with

$$A_{52} = \frac{1}{\Omega(2k_c)} (\mathcal{N}_{52} + i\Omega'(2k_c) \partial_X A_{42}).$$

Although (C 10) is nonlinear in A_{21} , it does not give the nature of the bifurcation. This is why we carry computations to the next order.

Order ϵ^6 :

$$\mathcal{L}_c h^{(6)} = -\mathcal{L}^{(4)} h^{(2)} - \mathcal{L}^{(3)} h^{(3)} - \mathcal{L}^{(2)} h^{(4)} - \mathcal{L}^{(1)} h^{(5)} - \mathcal{N}^{(6)}(h^{(2)}, h^{(3)}, h^{(4)}). \quad (\text{C } 12)$$

We only need the part of $\mathcal{N}^{(6)}$ of wavenumber k_c :

$$\begin{aligned} \mathcal{N}_{61} = & f_6 \overline{A_{21}} A_{42} + g_6 A_{21} \partial_X \mathcal{H} A_{30} + i j_6 A_{21} \partial_X A_{30} \\ & + \ell_6 (A_{21} A_{40} + A_{31} A_{30}) + m_6 |A_{21}|^2 A_{21} + i n_6 A_{30} \partial_X A_{21} \end{aligned}$$

with

$$\begin{aligned} f_6(k_c) &= \frac{Ma}{Ca} \left(-k_c^2 - \frac{9}{2} k_c^3 \right) + \frac{7k_c^4}{Ca}, \\ g_6(k_c) &= \frac{Ma}{Ca} \left(\frac{1}{2} k_c^3 + \frac{1}{2} k_c^2 \right) - k_c, \\ j_6(k_c) &= 2 \frac{Ma}{Ca} (k_c^3 + k_c^2 + k_c) - \frac{k_c^3}{Ca}, \\ \ell_6(k_c) &= -\frac{Ma}{Ca} \left(\frac{3}{2} k_c^3 + k_c^2 \right) + \frac{k_c^4}{Ca} = j_5(k_c), \\ m_6(k_c) &= \frac{Ma}{Ca} \left(\frac{7}{4} k_c^5 - \frac{1}{2} k_c^2 - \frac{3}{4} k_c^4 - \frac{5}{2} k_c^3 \right) - \frac{7k_c^3}{2} + \frac{k_c^4}{Ca}, \\ n_6(k_c) &= \frac{Ma}{Ca} \left(\frac{9}{2} k_c^2 + 2k_c \right) - \frac{4k_c^3}{Ca}. \end{aligned}$$

After solving equations (C 7), (C 11) for A_{30} and A_{40} , we use the solvability condition that the right-hand side of (C 12) is orthogonal to the null space of \mathcal{L}_c and we obtain an equation for A_{41} . Introducing

$$A = \epsilon A_{11} + \epsilon^2 A_{21} + \epsilon^3 A_{31} + \epsilon^4 A_{41} + \dots,$$

the last equation for A_{41} can be re-summed with equations (C 8), (C 10) for A_{21} and A_{31} . Using the inverse transformations of (C 1), (C 2), we finally obtain the amplitude

equation for $A(X, T)$:

$$\begin{aligned} & (-\Omega(k_c) + \alpha \partial_X^2 + \partial_T)A + i\beta \partial_X^3 A + \frac{1}{3Ca} \partial_X^4 A + \xi |A|^2 A \\ & + ik_c(j_6 k_c - \ell_6) \mathcal{H}[|A|^2]A + in_6 k_c^2 (\partial_X A) \int \mathcal{H}[|A|^2] \\ & + \ell_6 \left\{ k_c^2 A \iint (-\Omega(k_c) + \partial_T + \partial_X \mathcal{H})|A|^2 + 2ik_c A \int \mathcal{H}[A \partial_X \bar{A}] \right\} = 0. \end{aligned}$$

with

$$\xi(k_c) = m_6 + \frac{1}{\Omega(2k_c)} f_6 f_{22} - k_c^2 g_6 + \left(k_c^2 \frac{Ma}{2Ca} - 2k_c \right) \ell_6.$$

Taking the limit of small k_c with the help of the rescaling $\partial_X \rightarrow k_c \partial_X$ and $\partial_T \rightarrow k_c \partial_T$ leads to

$$\begin{aligned} & \left(\frac{\partial}{\partial T} - \sigma - \frac{3}{2} \frac{\partial^2}{\partial X^2} \right) A + 2i \frac{\partial^3 A}{\partial X^3} + \frac{1}{2} \frac{\partial^4 A}{\partial X^4} + \frac{45}{8} |A|^2 A + i6k_c \mathcal{H}[|A|^2]A \\ & - \frac{3}{2} k_c \left\{ A \iint \left(\frac{\partial}{\partial T} - \sigma + \frac{\partial}{\partial X} \mathcal{H} \right) |A|^2 + 2iA \int \mathcal{H} \left[A \frac{\partial \bar{A}}{\partial X} \right] \right\} + O(k_c^2) = 0, \quad (C13) \end{aligned}$$

hence the simplification (3.6). Note that (C13) is valid only if $A(X, T)$ vanishes at $X = \infty$, so that Hilbert transforms \mathcal{H} are well-defined. In contrast to standard weakly nonlinear analysis, this equation is non-local.

REFERENCES

- BÉNARD, H. 1900 Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquide. *Rev. Gén. Sci. Pures Appl.* **11**, 1261–1276.
- BERG, J. C., BOUDART, M. & ACRIVOS, A. 1966 Natural convection in pools of evaporating liquids. *J. Fluid Mech.* **24**, 721–735.
- BURELBACH, J. P., BANKOFF, S. G. & DAVIS, S. H. 1988 Nonlinear stability of evaporating/condensing liquid film. *J. Fluid Mech.* **195**, 463–494.
- CACHILE, M., BENICHO, O., POULARD, C. & CAZABAT, A. M. 2002 Evaporating droplets. *Langmuir* **18**, 8070–8078.
- DAVIS, S. H. 1987 Thermocapillary instabilities. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **19**, 403–435.
- DEEGAN, R. D., BAKAJIN, O., DUPONT, T. F., HUBER, G., NAGEL, S. R. & WITTEN, T. A. 1997 Capillary flow as the cause of ring stains from dried liquid drops. *Nature* **389**, 827–829.
- DEEGAN, R. D., BAKAJIN, O., DUPONT, T. F., HUBER, G., NAGEL, S. R. & WITTEN, T. A. 1999 Contact line deposit in an evaporating drop. *Phys. Rev. E* **62**, 217–239.
- ELBAUM, M. & LIPSON, S. G. 1994 How does a thin wetted film dry up? *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3562–3565.
- FANTON, X. & CAZABAT, A. M. 1998 Spreading and instabilities induced by a soluted Marangoni effect. *Langmuir* **14**, 2554–2561.
- FOURNIER, J. B. & CAZABAT, A. M. 1992 Tears of wine. *Europhys. Lett.* **20**, 517–524.
- FRIEDRICHS, R. & ENGEL, A. 2003 Nonlinear analysis of the Rosensweig instability. *Europhys. Lett.* **63**, 826–832.
- GOLOVIN, A. A., NEPOMNYASHCHY, A. A. & PISMEN, L. M. 1997 Nonlinear evolution and secondary instabilities of Marangoni convection in a liquid-gas system with deformable interface. *J. Fluid Mech.* **341**, 317–341.
- HEGSETH, J. J., RASHIDNIA, N. & CHAI, A. 1996 Natural convection in droplet evaporation. *Phys. Rev. E* **54**, 1640–1644.
- HOSOI, A. E. & BUSH, W. M. 2001 Evaporative instabilities in climbing films. *J. Fluid Mech.* **442**, 217–239.

- KALLIADASIS, S., KIYASHKO, A. & DEMEKHIN, E. A. 2003 Marangoni instability of a thin liquid film heated from below by a local heat source. *J. Fluid Mech.* **475**, 377–408.
- KAVEHPOUR, P., OVRYN, B. & MCKINLEY, G. H. 2002 Evaporatively-driven Marangoni instabilities of volatile liquid spreading on thermally conductive substrates. *Colloid Surface A* **206**, 409–423.
- KRISHNAMOORTHY, S., RAMASWAMY, B. & JOO, S. W. 1995 Spontaneous rupture of thin liquid films due to thermocapillarity : A full-scale direct numerical simulation. *Phys. Fluids* **7**, 2291–2293.
- LANGER, J. S. 1980 Pattern formation in crystal growth. *Rev. Mod. Phys.* **52**, 1–28.
- LIDE, S. R. 1995 *Handbook of Chemistry and Physics*, 75th edn. CRC Press.
- LYUSHNIN, A. V., GOLOVIN, A. A. & PISMEN, L. M. 2002 Fingering instability of thin evaporating liquid films. *Phys. Rev. E* **65**.
- MANCINI, H. & MAZA, D. 2003 Pattern formation without heating in an evaporative convection experiment. *Europhys. Lett.* **66**, 1–7.
- MANNEVILLE, P. 1990 *Dissipative Structures and Weak Turbulence*. Academic.
- MARANGONI, C. 1865 *On the Expansion of a Drop of Liquid Floating on the Surface of Another Liquid*. Pavia: Tipographia dei fratelli Fusi.
- MARGERIT, J., COLINET, P., LEBON, G., IORIO, C. S. & LEGROS, J. C. 2003 Interfacial nonequilibrium and Bénard-Marangoni instability of a liquid vapor system. *Phys. Rev. E* **68**.
- MARRA, J. & HUETHORST, J. A. M. 1991 Physical principles of Marangoni drying. *Langmuir* **7**, 2748–2755.
- MATAR, O. K. & CRASTER, R. V. 2001 Models for Marangoni Drying. *Phys. Fluids* **13**, 1869–1883.
- MERKT, D. & BESTEHORN, M. 2003 Bénard-Marangoni convection in a strongly evaporating fluid. *Physica D* **185**, 196–208.
- MILADINOVA, S., SLAVTCHEV, S., LEBON, G. & LEGROS, J. C. 2002 Long-wave instabilities of non-uniformly heated falling films. *J. Fluid Mech.* **453**, 153–175.
- NGUYEN, V. X. & STEBE, K. J. 2002 Patterning of small particles by a surfactant-enhanced Marangoni-Bénard instability. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 164501.
- O'BRIEN, S. B. G. M. 1993 On Marangoni drying: nonlinear kinematic waves in a thin film. *J. Fluid Mech.* **254**, 649–670.
- ORON, A., DAVIS, S. H. & BANKOFF, S. G. 1997 Long-scale evolution of thin liquid films. *Rev. Mod. Phys.* **69**, 931–980.
- POULARD, C., BENICHO, O. & CAZABAT, A. M. 2003 Freely receding evaporating droplets. *Langmuir* **19**, 8828–8834.
- PROSPERETTI, A. & PLESSET, M. S. 1984 The stability of an evaporating liquid surface. *Phys. Fluids* **27**, 1590–1602.
- REDON, C., BROCHARD-WYART, F. & RONDELEZ, F. 1992 Festoon instabilities of slightly volatile liquids during spreading. *J. Phys. II* **2**, 1671–1676.
- SAMID-MERZEL, N., LIPSON, S. G. & TANNHAUSER, D. S. 1998 Pattern formation in drying water films. *Phys. Rev. E* **57** (3).
- SCHATZ, M. F. & NEITZEL, G. P. 2001 Experiments on thermocapillary instabilities. *Annu. Rev. Fluid Mech.* **33**, 93–129.
- THIELE, U. & KNOBLOCH, E. 2004 Thin liquid films on a slightly inclined heated plate. *Physica D* **190**, 213–248.
- THOMSON, J. 1855 On certain curious motions observable at the surfaces of wine and other alcoholic liquors. *Phil. Mag.* **10**, 330.
- VANHOOK, S., SCHATZ, M. F., SWIFT, J. B., MCCORMICK, W. D. & SWINNEY, H. L. 1997 Long-wavelength surface-tension-driven Bénard convection: experiment and theory. *J. Fluid Mech.* **345**, 45–78.
- VUILLEUMIER, R., EGO, V., NELTNER, L. & CAZABAT, A. M. 1995 Tears of wine: the stationary state. *Langmuir* **11**, 4117–4121.
- YEO, L. Y., CRASTER, R. V. & MATAR, O. K. 2003 Marangoni instability of a thin liquid film on a locally heated horizontal wall. *Phys. Rev. E* **67**, 056315.

5. Lohse, D. *et al.* *Phys. Rev. Lett.* **93**, 198003 (2004).
6. Stone, M. B. *et al.* *Nature* **427**, 503–504 (2004).
7. Lawrence, T. E. *Seven Pillars of Wisdom* (Anchor, New York, 1926).
8. Bagnold, R. A. *The Physics of Blown Sand and Desert Dunes* (Methuen, London, 1941).

Supplementary information accompanies this communication on Nature's website.

Competing financial interests: declared none.

Adhesion

Elastocapillary coalescence in wet hair

We investigated why wet hair clumps into bundles by dunking a model brush of parallel elastic lamellae into a perfectly wetting liquid. As the brush is withdrawn, pairs of bundles aggregate successively, forming complex hierarchical patterns that depend on a balance between capillary forces and the elasticity of the lamellae. This capillary-driven self-assembly of flexible structures, which occurs in the tarsi of insects¹ and in biomimetic adhesives² but which can also damage micro-electromechanical structures^{3–6} or carbon nanotube ‘carpets’^{6–8}, represents a new type of coalescence process.

When the brush, which consists of regularly spaced, flexible lamellae, is progressively withdrawn from the bath of liquid, a cascade of successive sticking events leads to a hierarchical bundling pattern (Fig. 1a). We studied one such elementary sticking event for two lamellae separated by a distance d . If the strips were rigid, the perfectly wetting liquid would rise up to Jurin's height, $h_j = 2L_c^2/d$, where $L_c = (\gamma/\rho g)^{1/2}$ is the capillary length; γ and ρ are the liquid's surface tension and density, respectively. When the strips are flexible, capillary suction bends the lamellae and the liquid rises higher in this more confined environment. As two lamellae are withdrawn to height L (Fig. 1b), a capillary rise to height h_j (or to the top when $L < h_j$) precedes the sticking together of the strips, which happens when L becomes large.

Surprisingly, the height of rise L_{wet} increases linearly with L in this last regime, whereas $L_{\text{dry}} = L - L_{\text{wet}}$ remains constant. In fact, L_{dry} is prescribed by a balance between capillarity and elasticity. The capillary energy (per unit width) is $-2\gamma L_{\text{wet}}$ whereas the elastic energy is proportional to the square of the typical curvature, d/L_{dry}^2 , and reads exactly $3\kappa d^2/L_{\text{dry}}^3$ in this geometry, where κ is the bending stiffness of the strips. Minimizing the sum of the two energies (gravity becomes negligible in this regime) with respect to L_{dry} yields

$$L_{\text{dry}}^4 = \frac{9}{2} d^2 L_{\text{EC}}^2 \quad (1)$$

where $L_{\text{EC}} = (\kappa/g)^{1/2}$ is the elastocapillary length, in agreement with measurements made over several orders of magnitude

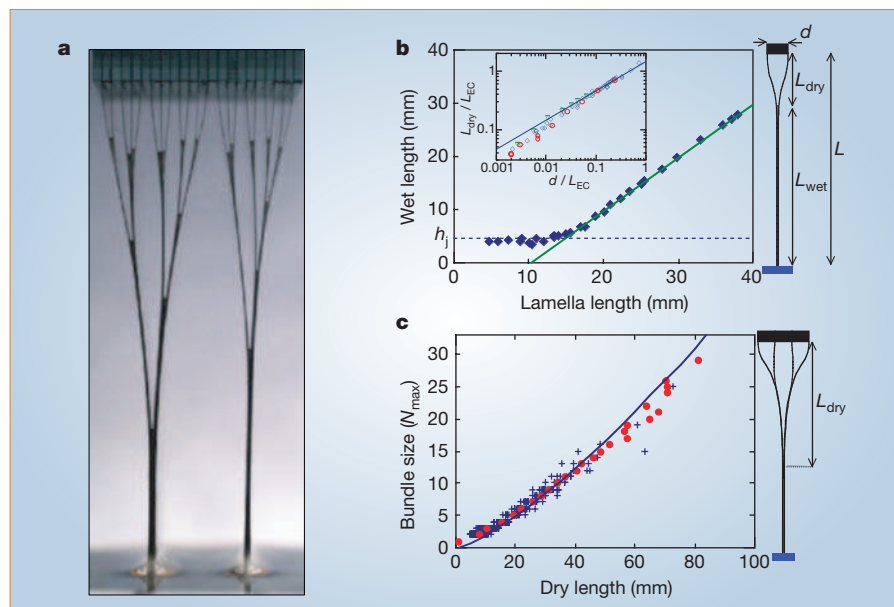


Figure 1 Flexible lamellae stick together after wetting. **a**, Lamellae in a wetted model brush after a sequence of sticking or unsticking events that cause aggregation (viewing from top to bottom) or fragmentation (from bottom to top), respectively. **b**, Height of rise, L_{wet} , of liquid between a lamella pair is plotted against the withdrawal height, L , showing the transition from the capillary rise (dashed line; $L_{\text{wet}} = h_j$) to the sticking regime (full green line; $L_{\text{dry}} = L - L_{\text{wet}}$ is constant). Polyester strips separated by $d = 1$ mm (width, 25 mm; thickness, $e = 100$ μm ; bending rigidity, $\kappa = 5.1 \times 10^{-4}$ N m) were dipped into silicon oil (density, $\rho = 950$ kg m⁻³ and surface tension $\gamma = 20.6$ mN m⁻¹, leading to $h_j = 4.3$ mm). Inset, sticking regime. Non-dimensional dry length, $L_{\text{dry}}/L_{\text{EC}}$, is plotted against non-dimensional separation, d/L_{EC} ; $L_{\text{EC}} = (\kappa/g)^{1/2}$, which is the elastocapillary length (red circles: $e = 50$ μm , $L_{\text{EC}} = 47$ mm; blue diamonds: $e = 100$ μm , $L_{\text{EC}} = 150$ mm; green triangles: $e = 170$ μm , $L_{\text{EC}} = 370$ mm); line: comparison with theory (equation (1); no adjustable parameter). **c**, Aggregation of multiple lamellae into bundles ($e = 50$ μm , $d = 1$ mm). Number of lamellae per bundle is plotted against dry length. Blue crosses, raw data; red circles, averaging of data; line, comparison with theory (equation (2); no adjustable parameter).

(Fig. 1b, inset). An identical energy formulation is found in fracture theory⁹, in which the capillary energy is replaced by the material fracture energy. Whereas L_{EC} gives the typical curvature induced by capillarity¹⁰, L_{dry} is the critical length above which lamellar structures collapse. When the dimensions of a structure are scaled down by a factor λ , both L_{EC} and L_{dry} (scaling as $\lambda^{3/2}$ and $\lambda^{5/4}$, respectively) eventually become smaller than the structure size, an effect that is responsible for damaging microsystem structures^{2–8}.

To generalize equation (1) to multiple lamellae, we assume that a cluster of N lamellae behaves as a single lamella that is N times more rigid (we neglect solid friction as the wetting liquid lubricates the strips). On average, such a cluster results from the self-similar aggregation of two bundles of size $N/2$, clamped at a distance $Nd/2$. The dry length (above the junction of the two clumps) becomes

$$L_{\text{dry}}^4 = \frac{9}{16} N^3 d^2 L_{\text{EC}}^2 \quad (2)$$

which is in good agreement with experiment (Fig. 1c). The maximum size N_{max} of clusters in a brush with lamellae of length L is given by equation (2), with $L_{\text{dry}} = L$. However, smaller bundles are also seen if their aggregation with a neighbour leads to a size exceeding N_{max} . The broad distribution of clump sizes results from random initial imperfections, and requires statistical analysis. A

derivation based on Smoluchowski's coalescence process¹¹ leads to an original self-similar distribution that predicts an average cluster size of $0.67N_{\text{max}}$ (A. B. *et al.*, manuscript in preparation).

Our results, once scaled down, could help to improve the design of micro-electromechanical systems. The self-similar aggregation process described here should extend to different geometries (such as those of fibrous materials) and to similar systems involving coalescence or fragmentation.

José Bico*, **Benoît Roman***, **Loïc Moulin***, **Arezki Boudaoud†**

*Physique et Mécanique des Milieux Hétérogènes (UMR CNRS 7636), ESPCI, and †Laboratoire de Physique Statistique de l'ENS (UMR CNRS 8550), 75231 Paris Cedex 5, France

e-mail: jbico@pmmh.espci.fr

1. Eisner, T. & Aneshansley, D. J. *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **97**, 6568–6573 (2000).
2. Geim, A. *et al.* *Nature Mater.* **2**, 461–463 (2003).
3. Tanaka, T., Morigami, M. & Atoda, N. *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, 6059–6059 (1993).
4. Mastrangelo, C. H. & Hsu, C. H. *J. Microelectromech. Syst.* **2**, 33–55 (1993).
5. Raccart, O., Tardif, F., Arnaud d'Avitaya, F. & Vaireine, T. *J. Microelectromech. Syst.* **14**, 1083–1090 (2004).
6. Hui, C. Y., Jagota, A., Lin, Y. Y. & Kramer, E. J. *Langmuir* **18**, 1394–1407 (2002).
7. Lau, K. *et al.* *Nano Lett.* **3**, 1701–1705 (2003).
8. Chakrapani, N., Wei, B., Carrillo, A., Ajayan, P. M. & Kane, R. S. *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **101**, 4009–4012 (2004).
9. Freund, L. B. *Dynamic Fracture Mechanics* (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1990).
10. Cohen, A. E. & Mahadevan, L. *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **100**, 12141–12146 (2003).
11. Leyvraz, F. *Phys. Rep.* **383**, 95–212 (2003).

Competing financial interests: declared none.

The rolling up of sheets in a steady flow

By LIONEL SCHOUVEILER¹ AND AREZKI BOUDAUD²

¹Institut de Recherche sur les Phénomènes Hors Équilibre, 49 rue Joliot-Curie, BP 146, F-13384
Marseille Cedex 13, France

²Laboratoire de Physique Statistique, Ecole Normale Supérieure, 24 rue Lhomond,
F-75231 Paris Cedex 05, France

(Received 21 January 2006 and in revised form 9 May 2006)

The mechanism of reconfiguration of broad leaves subjected to wind loading is investigated. Circular plastic sheets cut along a radius are immersed in a water flow. They roll up into cones when held at their centres. The opening angle of the cone and the drag force exerted on the sheet are measured as a function of the flow velocity and of the sheet bending rigidity. The cone becomes sharper when the velocity increases or when the sheet stiffness decreases; the reconfiguration leads to a decrease in the drag coefficient. Scaling laws are derived from the mechanical equilibrium of the sheets – the balance between form drag and elastic forces – and the experimental data collapse onto master curves. Two models for the pressure field yield theoretical curves in semi-quantitative agreement with the experiments.

1. Introduction

To withstand high wind loads without damage, plants have developed different strategies. For instance, for broad-leaved species such as the tuliptree or red maple, Vogel (1989) reports the shape reconfiguration of the leaves into cones. This gives rise to a streamlining of the leaf and a reduction of the surface area exposed to the wind, and results in a reduction of the drag coefficient with increasing wind speed. A review of the corresponding biomechanical constraints is given by Niklas (1999). One might wonder whether physiological processes are involved or the coupling between the flow and a flexible object suffices to cause reconfiguration. This was one of the motivations of Alben, Shelley & Zhang (2002, 2004) who performed two-dimensional experiments on the deformation of a flexible fibre held in a flowing soap film. They observed the fibre to bend as the velocity of the flow was increased and found the drag coefficient to vanish at high velocity. They solved the corresponding coupled elastic–fluid problem and obtained a quantitative agreement with the experiments. However, as the behaviour of slender elastic objects depends strongly on their dimensionality (see e.g. Landau & Lifchitz 1990), we aim here to extend the investigations of Alben *et al.* (2002, 2004) to a more realistic three-dimensional configuration.

Although fluid–structure interactions have received much attention, most studies were restricted to small deformations of the elastic structure, often aimed at characterizing its stability, vibrations or sound emission (Howe 1998). This might be due to the lack of analytical methods or to the requirement of highly sophisticated numerical methods (see Etienne & Pelletier 2005, and references therein) in order to couple large elastic deformations with a flow. Schouveiler, Eloy & Le Gal (2005)

also investigated experimentally and theoretically the equilibrium shapes of a flexible filament hanging in a flow, having therefore large deformations. In practice, most structures are stiff enough not to be deformed by a flow. The notable exception comes from sailing: the shape of sails in an airflow has been the subject of numerous studies (for a review, see Lorillu, Weber & Hureau 2002), although the elasticity of the sail was usually neglected.

The present study concerns the deformation of elastic sheets put into a flow and is motivated by the observations of Vogel (1989) on tree leaves. The leaf reconfiguration by flow-induced forces is first experimentally reproduced in the laboratory using plastic sheets in a water channel. Section 2 reports on these experiments. In §3 we formulate the coupled elastic and hydrodynamic problem and we give two models for the pressure field. Theoretical and experimental results are compared and analysed in §4 before the concluding discussion of §5.

2. Experiments

We considered a thin circular plastic sheet, of radius R and bending rigidity D , cut along one radius. It was held in a water flow of velocity U perpendicular to the initial sheet. Experiments were conducted in a free-surface water channel. The test section was 140 cm long with a water depth at rest of 45 cm and was slightly diverging to compensate for the downstream growth of the boundary layers on the tunnel walls. The width of the section that initially contained the sheet was 38 cm. The free-stream velocity U could be continuously varied up to 1 m s^{-1} . The sheets were held at their centre in the channel, at the end of an upstream tube parallel to the flow. The tube was rigidly attached perpendicularly to a beam that was fixed on a frame above the free surface.

Eleven sheets were tested: five of radius $R = 10 \text{ cm}$ and of different bending rigidities D ranging from 0.27×10^{-3} to $3.03 \times 10^{-3} \text{ N m}$, and seven of bending rigidity $D = 0.99 \times 10^{-3} \text{ N m}$ and of radii R ranging from 4 to 10 cm. We used plastic sheets such as transparencies or plastic covers. For each type of sheet, the rigidity D was deduced from the measurement of the small deflections due to gravity of a strip clamped at one end, when varying the strip length.

Without a flow ($U = 0$) the sheet was flat and perpendicular to the channel section. When subjected to the flow load, the sheet rolled up into a cone with a circular base. The ratio of the plastic to the water density being close to 1, the apparent weight of the sheet was negligible and the cone appeared symmetric around an axis parallel to the incoming flow. The cone became increasingly acute as the flow speed was increased. The flow-induced reconfiguration is illustrated in figure 1 for a sheet of radius $R = 10 \text{ cm}$ and bending rigidity $D = 0.27 \times 10^{-3} \text{ N m}$ at three different values of U . Photographs were taken using a monochrome video camera, perpendicularly to the flow, through the glass sidewall of the channel.

The sheet reconfiguration was quantified using the opening angle of the cone α , as defined in figure 1(a) so that $\alpha = 0$ when the sheet is flat ($U = 0$). We actually measured the vertex angle 2ϵ between the two lines that limit the cone on the visualizations and deduced $\alpha = \pi/2 - \epsilon$. The evolution of α with the flow velocity U is shown in figure 2 for the eleven sheets tested. As U is increased from 0, α smoothly increases with a rate that becomes weaker and weaker. Figure 2(a) shows the effect of varying the bending rigidity D . As expected, the angle α decreases as the bending rigidity D is increased. For the two most flexible sheets ($D = 0.27 \times 10^{-3}$ and $0.59 \times 10^{-3} \text{ N m}$), α is not defined for the highest velocities because then the axisymmetry is lost with the

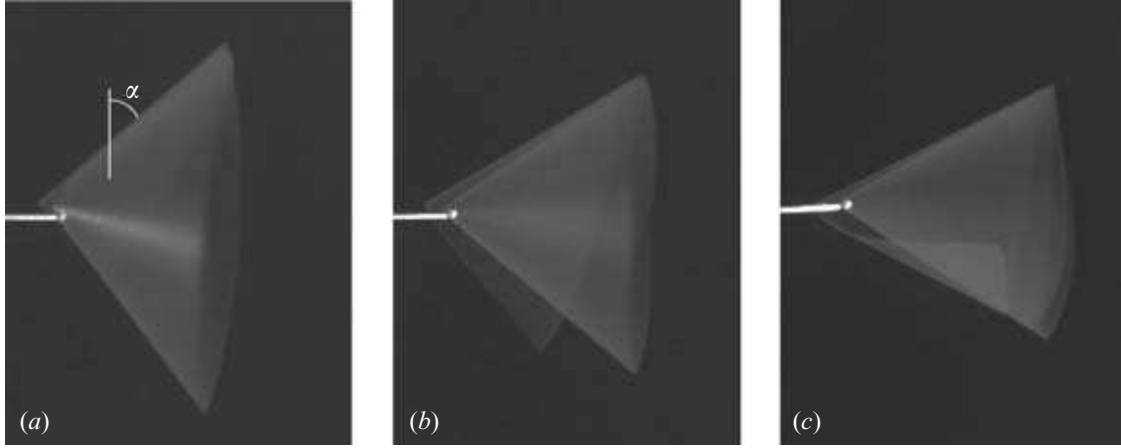


FIGURE 1. Visualizations of the sheet reconfiguration into increasingly sharp cones for a sheet of bending rigidity $D = 0.27 \times 10^{-3} \text{ N m}$ and radius $R = 10 \text{ cm}$: (a) $U = 8.3 \text{ cm s}^{-1}$, (b) 17.7 cm s^{-1} , (c) 59.1 cm s^{-1} . Flow from left to right. The cone opening angle α is defined in (a).

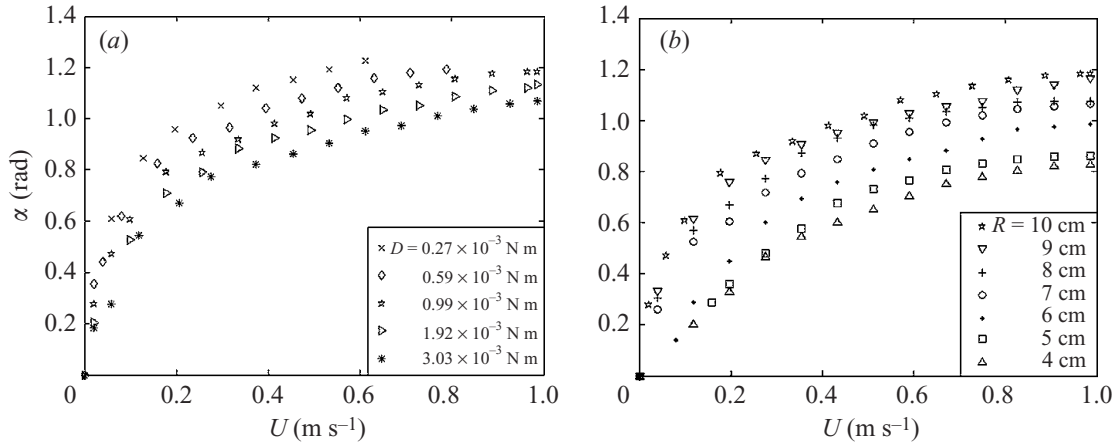


FIGURE 2. Bending angle α as a function of the free-stream velocity U : effects of (a) bending rigidity D for $R = 10 \text{ cm}$ and (b) of sheet radius R for $D = 0.99 \times 10^{-3} \text{ N m}$.

appearance of two folds along the cone. Similarly, figure 2(b) shows the evolution of α for a given rigidity and different radii R . α appears to be a decreasing function of R : the reconfiguration is more important for the largest sheets. It should be pointed out that here U is the free-stream velocity; in fact the flow velocity continuously increases from the tip along the cone because of the continuous section reduction.

In order to measure the drag force d acting on sheets, the support beam was attached to a four-strain-gauge calibrated balance (DeltaLab EI 450). Results for sheets of radius $R = 10 \text{ cm}$ and of two different bending rigidities are shown in figure 3 together with data that we obtained for a rigid disk of the same radius and held perpendicularly to the free stream. For these data, the drag exerted on the support alone was measured and subtracted from the total drag measured with the sheets. While for the rigid disk we find the classical quadratic behaviour (shown by the U^2 fit curve in figure 3, which incidentally indicates that the viscous drag is negligible in this velocity range), the comparison with the data for flexible sheets shows that the flow-induced reconfiguration allows the leaves to strongly reduce the load they have to sustain. This optimization is more important as the rigidity becomes smaller due to the smaller area exposed to the flow.

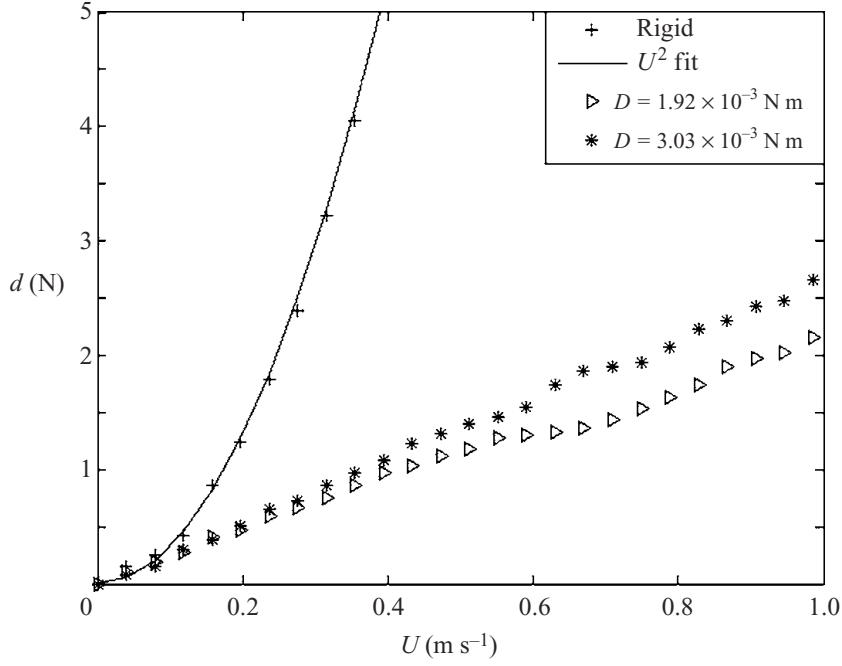


FIGURE 3. Drag force d as a function of the free-stream velocity U for two sheets of radius $R = 10$ cm, and comparison with the drag on a rigid disk of the same radius.

3. Theory

3.1. Formulation

We consider here the static equilibrium of a circular sheet of bending rigidity D and of radius R . It is cut along one radius and its centre is fixed in a steady flow of free-stream velocity U . To express our theoretical model, we use the spherical coordinate system with origin at the sheet centre and axis of reference given by the direction of the flow, r being the polar distance, θ the azimuthal angle and ϕ the polar angle. In general, a sheet has two modes of deformation: bending – the sheet acquires a curvature – and stretching – distances on the sheet are changed. First, let us note that, as the sheet is thin, pure bending deformations are preferred here as they are allowed by the boundary conditions (see e.g. Rayleigh 1945). So we consider only bending of the sheet. Furthermore, in agreement with the experimental observations we assume that the system keeps a symmetry of revolution. Pure bending deformations of a surface with a symmetry of revolution yield only cylinders and cones. Here the sheet is held at its centre so that it should have the shape of a cone of opening angle α (as defined in figure 1a). Let $P_\alpha(r)$ be the differential dynamic pressure field exerted by the flow on such a cone, i.e. the difference between the pressures on the upward and leeward sides of the sheet. The energy of the sheet is the sum of its elastic bending energy due to a curvature $c(r)$ and of the potential energy due to the flow pressure:

$$\mathcal{E} = \frac{1}{2}D \int_S c^2 dS - \int_0^\alpha d\alpha' \int_{S_{\alpha'}} P_{\alpha'} r dS_{\alpha'}, \quad (3.1)$$

where the first integral is calculated over all the sheet surface $S = \pi R^2$ whereas the second term contains the total pressure torque over the surface exposed to the incoming flow $S_{\alpha'} = \pi R^2 \cos \alpha'$. Note that because the ratio of the sheet material density to the fluid density is close to one and because we consider values of the Reynolds number Re ($Re = UR/\nu$ compares inertia and viscous forces, ν being the kinematical viscosity of the fluid) as large as 10^5 , any gravity and viscous effects are neglected.

The local curvature of a cone of opening angle α being given by

$$c = \tan \alpha / r, \quad (3.2)$$

the first integral in (3.1) appears to be logarithmically divergent as r goes to 0, so that a cut-off radius R_c is needed. Experimentally this cut-off corresponds to the size of the holding tube $R_c \simeq 1$ mm; its precise value is unimportant because the dependence of \mathcal{E} on R_c is only logarithmic. Introducing the non-dimensional pressure $\tilde{P}_\alpha(\tilde{r}) = P_\alpha(R\tilde{r})/(\rho U^2)$, where ρ is the fluid density, and using the radius of the sheet R as a unit of length, the total potential energy \mathcal{E} (3.1) becomes

$$\mathcal{E} = \pi D \ln \left(\frac{R}{R_c} \right) \tan^2 \alpha - \rho U^2 R^3 \int_0^\alpha d\alpha' \int_{\tilde{r}=0}^{\tilde{r}=1} \tilde{P}_{\alpha'}(\tilde{r}) \tilde{r} \, 2\pi \tilde{r} \cos \alpha' d\tilde{r}. \quad (3.3)$$

The ratio between the two energy scales is the elastohydrodynamical number

$$\mathcal{N} = \frac{\rho U^2 R^3}{D \ln(R/R_c)} = \left(\frac{U}{U_c} \right)^2. \quad (3.4)$$

Then finding the cone equilibrium angle reduces to finding the minimum of the reduced energy $\tilde{\mathcal{E}}(\alpha) = \mathcal{E}(\alpha)/(2\pi D \ln(R/R_c))$, i.e. the zeros of

$$\frac{\partial \tilde{\mathcal{E}}}{\partial \alpha} = \frac{\sin \alpha}{\cos^3 \alpha} - 2\mathcal{N} \int_{\tilde{r}=0}^{\tilde{r}=1} \tilde{P}_\alpha(\tilde{r}) \tilde{r}^2 \cos \alpha d\tilde{r}. \quad (3.5)$$

However the pressure field is still unknown at this stage and is the subject of the following subsection.

3.2. A model for the pressure field

Alben *et al.* (2002, 2004) used Helmholtz's free-streamline theory to compute the pressure field around their flexible fibre held in a flowing soap film. This method relies heavily on complex variables which restricts it to two dimensions. Unfortunately, we are not aware of any analytical or semi-analytical method for three-dimensional problems. Thus our primary goal is to provide a qualitative understanding of the experiments.

3.2.1. A potential flow model

Instead of looking for a potential flow with the correct boundary conditions at infinity and modelling the separation at the edge of the cone, we assume that the local form of the velocity potential at the tip holds all over the cone, imposing that the velocity at the edge ($r = R, \theta = \pi/2 + \alpha$) is equal to the far-field velocity U .

A separable solution to Laplace's equation is

$$\psi(r, \theta) = \psi_0 r^n L(n, \cos \theta), \quad (3.6)$$

L being a Legendre function of the first kind. The corresponding velocity field is

$$u_r = n\psi_0 r^{n-1} L(n, \cos \theta), \quad (3.7)$$

$$u_\theta = \psi_0 r^{n-1} (\cos \theta L(n, \cos \theta) - L(n-1, \cos \theta)) / \sin \theta. \quad (3.8)$$

The kinematic boundary condition at the cone surface

$$u_\theta(r, \theta = \pi/2 + \alpha) = 0 \quad (3.9)$$

determines the value of the exponent n as a function of α (choosing the smallest value of n such that there is no divergence of the velocity field). This $n(\alpha)$ yields the self-similar behaviour of any velocity potential near a cone tip.

We assume that this form holds even far from the tip and we try to ‘match’ it to the far-field velocity by imposing that

$$u_r(r = R, \theta = \pi/2 + \alpha) = U, \quad (3.10)$$

which determines the prefactor ψ_0 of the velocity potential. This condition amounts to stating that the pressure in the wake p_w is equal to the far-field pressure p_∞ (see below).

In order to determine the differential pressure P_α exerted on the sheet, we use Bernouilli’s equation, the pressure on the windward side being $p_w + P_\alpha$,

$$p_w + P_\alpha(r) + \frac{1}{2}\rho u_r^2 = p_\infty + \frac{1}{2}\rho U^2. \quad (3.11)$$

Again under the assumption that $p_w = p_\infty$, we obtain the non-dimensional form

$$\tilde{P}_\alpha(\tilde{r}) = \frac{1}{2}(1 - \tilde{r}^{2n(\alpha)-2}), \quad (3.12)$$

n being determined by the implicit equation (3.9). Note that this assumption on the leeward pressure amounts to neglecting the recirculation flow behind the cone.

Plugging relation (3.12) into the equilibrium condition given by (3.5) allows the equilibrium angle α to be calculated according to the potential flow model. Note that this model is an approximation in the sense that the expansion of the velocity potential is truncated at its lower power in r .

3.2.2. A momentum conservation model

A simpler expression for the pressure field can be obtained using a momentum flux balance. If we assume that the drag d on the sheet is generated by the deviation of a section of area $S = \pi R^2 \cos^2 \alpha$ (equal to the area of the base of the cone) of the upward flow (momentum flux ρv^2) by an angle α , we find that

$$d = \rho v^2(1 - \sin \alpha)\pi R^2 \cos^2 \alpha. \quad (3.13)$$

If we moreover assume that the pressure field is constant over the cone then we obtain

$$P_\alpha(r) = \rho v^2(1 - \sin \alpha), \quad (3.14)$$

or in non-dimensional terms

$$\tilde{P}_\alpha(\tilde{r}) = 1 - \sin \alpha. \quad (3.15)$$

This formula yields the equilibrium angle α according to the momentum conservation model.

According to this model, the present system would be equivalent to the problem of a cone in a free jet, the cross-section of which was arbitrarily chosen as equal to the cone basis. Also, assuming the pressure field to be constant on the cone is not very realistic; however the results of both models appear very similar (see below). This might be ascribed to the fact that the equilibrium angle does not depend on the details of the pressure field but only on an integral.

4. Results

4.1. Drag on a cone

As a check and to compare with known results on the drag on a cone, we computed the drag coefficient on a cone as resulting from our two pressure fields:

$$C = \frac{d}{\frac{1}{2}\rho U^2 \pi R^2 \cos^2 \alpha},$$

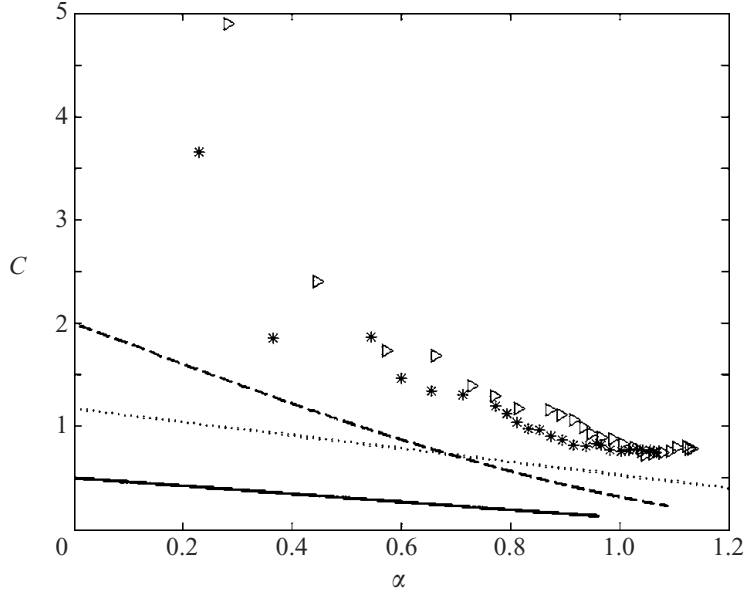


FIGURE 4. Drag coefficient C versus cone angle α : experimental data (same symbols as in figure 3), the linear fit of Hoerner's data (\cdots) and theoretical curves as deduced from the potential flow model (—) and from the momentum conservation model (---).

where the surface of reference is the base of the cone and the drag force is given by

$$d = \int_{S_\alpha} P_\alpha(r) \cos \alpha \, dS_\alpha. \quad (4.1)$$

For the potential flow model, we find $C = 1 - 1/n(\alpha)$ which decreases from $1/2$ for $\alpha = 0$ to 0 for $\alpha = \pi/2$. For the momentum conservation model, $C = 2(1 - \sin \alpha)$ which decreases from 2 for $\alpha = 0$ to 0 for $\alpha = \pi/2$. In the experimental data given by Hoerner (1993), the drag coefficient decreases from 1.17 ($\alpha = 0$) to 0.16 ($\alpha = \pi/2$). Figure 4 shows these results, along with the experimental measurements for the drag coefficient. It should be pointed that the lower values of the angle α (< 0.4) correspond to a Reynolds number in the range 500 – 1000 , so that they are directly comparable neither to the two inviscid theories nor to Hoerner's data (Reynolds number of the order of 10^4), because of the contribution of the viscous drag. Except for small angles, all the curves have the same trends; our measurements are higher than Hoerner's by roughly 50% . However Hoerner warns that his data should be corrected using the value of the pressure in the wake and our measurements imply the existence of a more negative dynamic pressure in the wake. The most likely explanation is that the detachment at the trailing edge of hollow cones (the present study) differs from the case of the full cones of Hoerner (1993) as this is the main difference between the two experimental systems.

4.2. The equilibrium angle

In the model presented above, the equilibrium angle α is assumed to result from a balance between flow pressure on the sheet and sheet rigidity; this leads to a characteristic velocity scale U_c and to the natural elastohydrodynamical control parameter $\mathcal{N} = (U/U_c)^2$. In spite of its simplicity, this scaling analysis is confirmed by our experimental observations: figure 5 shows that the experimental values of the angle α for the eleven tested sheets collapse on a single curve when they are plotted with respect to the non-dimensional parameter \mathcal{N} . Dispersion appears to be more important for small \mathcal{N} , which might be ascribed to the viscous drag which was

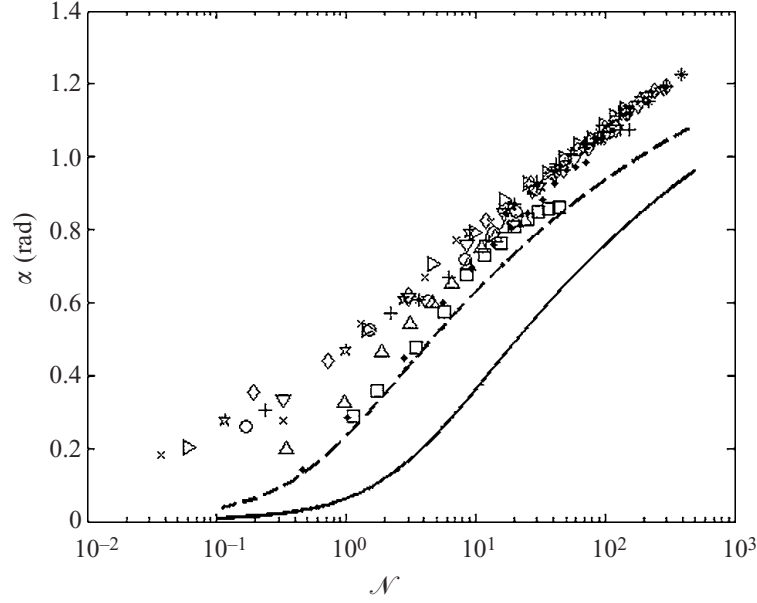


FIGURE 5. Angle α versus the non-dimensional elastohydrodynamical number \mathcal{N} : experimental data (same symbols as in figure 2) and theoretical curves as deduced from the potential flow model (—) and from the momentum conservation model (---).

neglected in the analysis. The two theoretical curves, deduced from the potential flow model and from the momentum conservation model, are also plotted in figure 5. They evolve smoothly from $\alpha = 0$ to the limiting value $\alpha = \pi/2$. Although both theories have a tendency to underestimate the experimental data, the qualitative description of the evolution of the opening angle is good and quantitatively not very far from the experimental values. Figure 5 seems to indicate that the momentum conservation model is more relevant than the potential one. But it should be pointed out that the data corresponding to this model in figure 5 have been calculated for a jet section arbitrarily chosen as equal to the cone base. In this sense, this section can be seen as a adjustment parameter for the experimental data.

4.3. The drag coefficient

As we are interested in the drag reduction through folding, we define the drag coefficient

$$C_d = \frac{d}{\frac{1}{2}\rho U^2 \pi R^2}, \quad (4.2)$$

using the initial sheet area πR^2 as a reference.

We find that

$$C_d = (1 - 1/n(\alpha)) \cos^2 \alpha, \quad (4.3)$$

for the potential flow model and

$$C_d = 2(1 - \sin \alpha) \cos^2 \alpha \quad (4.4)$$

for the momentum conservation model.

The drag coefficient evolution with respect to the non-dimensional parameter \mathcal{N} is shown in figure 6. The experimental C_d have been calculated using (4.2) with the measured drag values d of figure 3; we note that, as for the angle α (see figure 5), the points for the two tested sheets fall on a single curve when plotted versus \mathcal{N} . Moreover, and in contrast to the rigid disk, for which we have seen in figure 3 that the drag is proportional to U^2 (that is the drag coefficient is constant), for the flexible

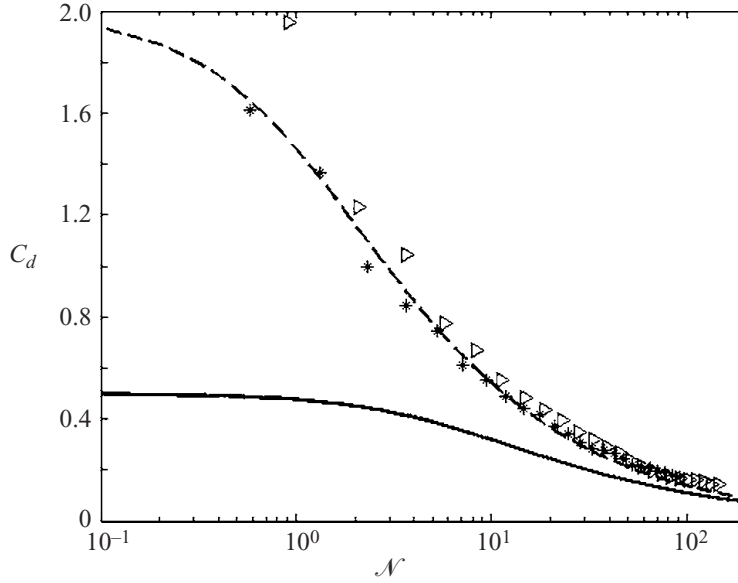


FIGURE 6. Drag coefficient C_d (defined with the area of the flat sheet) versus the non-dimensional elastohydrodynamical number \mathcal{N} : experimental data (same symbols as in figure 3) and theoretical curves from the potential flow model (—) and from the momentum conservation model (---).

sheets C_d appears to decay with \mathcal{N} . Here also, both theories are seen to qualitatively describe the evolution of the drag coefficient. The theoretical values deduced from the potential flow model underestimate the experimental data in the whole \mathcal{N} range investigated and the difference between the data sets is small at high \mathcal{N} . Finally note that the astonishing quantitative agreement of the theoretical values obtained by the momentum conservation model with the experiments must be ascribed to the arbitrary choice of the section as adjustment parameter.

4.4. The limit of large elastohydrodynamical number

As the elastohydrodynamical number becomes large (fast flow or very flexible sheet), the cone becomes sharp and $\epsilon = \pi/2 - \alpha$ approaches 0. In general, the pressure field should vanish as well for $\epsilon = 0$, so that we expect $\tilde{P} \sim \epsilon^a$, with $a > 0$. In the case of the two models used here, $\tilde{P} \sim \epsilon^2$ so that the equilibrium condition and the drag coefficient definition yield

$$\epsilon = \pi/2 - \alpha \sim \mathcal{N}^{-1/6} \quad \text{and} \quad C_d \sim \mathcal{N}^{-2/3}. \quad (4.5)$$

These scalings account for the slow increase of the equilibrium angle α and the faster decrease of the drag coefficient C_d with the elastohydrodynamical number \mathcal{N} . However this limit is not reached experimentally: the sheet loses axisymmetry, probably owing to friction between different layers. The scaling for the drag is the same in the two-dimensional case (Alben *et al.* 2002, 2004), although the scaling for the shape is different ($\epsilon \sim \mathcal{N}^{-1/3}$).

5. Concluding discussion

When subjected to the load of a fluid flow, a circular sheet cut along a radius reconfigures into a cone. We have showed that this behaviour, previously observed for broad leaves in high wind, is mainly due to the mechanical equilibrium of the sheet and is controlled by the non-dimensional elastohydrodynamical number \mathcal{N} (3.4) which measures the balance between flow pressure and sheet bending rigidity. Comparison

with the drag on a rigid circular sheet shows that the sheet deformation allows a substantial drag reduction. A model that couples hydrodynamics and elasticity was derived. Its main limitation is in the computation of the pressure field. Resorting to full numerical simulations might be useful to refine the present study. In spite of its limitations, the model semi-quantitatively accounts for the cone becoming sharper and for the drag reduction as the fluid velocity is increased.

Returning to the reconfiguration of leaves, our system has two main simplifications. On the one hand, leaves are stiffened by their veins. However, in tree leaves, the stiffer (and older) veins often bifurcate from the same point (the end of the petiole), which allows folding into a cone without deforming these veins. On the other hand, the geometry of a leaf is more akin to that of a sector of disk of opening angle $\beta < 2\pi$ which cannot fold into a cone of angle less than $\alpha = \cos^{-1}(\beta/2\pi)$, so that we expect a threshold for reconfiguration. Also, using the values of the bending rigidity D in the range 5×10^{-5} to 5×10^{-3} N m (Read & Sanson 2003, for thick leaves), an airflow of velocity $U = 10 \text{ m s}^{-1}$ and a size R in the range 5–10 cm, the elastohydrodynamical number \mathcal{N} is found to be in the range 5–500. As a consequence, only some types of leaves would be subject to reconfiguration above a threshold in wind velocity, in agreement with observations. To summarize, our results should hold qualitatively for the reconfiguration of leaves and yield a first step in the full understanding of the drag reduction in trees.

We thank Benoît Roman, José Bico and Médéric Argentina for suggestions and discussions. This article has greatly benefited from the input and the corrections of Emmanuel de Langre to whom we are very grateful.

REFERENCES

- ALBEN, S., SHELLEY, M. & ZHANG, J. 2002 Drag reduction through self-similar bending of a flexible body. *Nature* **420**, 479–481.
- ALBEN, S., SHELLEY, M. & ZHANG, J. 2004 How flexibility induces streamlining in a two-dimensional flow. *Phys. Fluids* **16**, 1694–1713.
- ETIENNE, S. & PELLETIER, D. 2005 A general approach to sensitivity analysis of fluid-structure interactions. *J. Fluids Struct.* **21**, 169–186.
- HOERNER, S. F. 1993 *Fluid-dynamic Drag*. Bakersfield, CA: Hoerner Fluid Dynamics.
- HOWE, M. S. 1998 *Acoustics of Fluid-Structure Interactions*. Cambridge University Press.
- LANDAU, L. & LIFCHITZ, E. 1990 *Théorie de l'Élasticité*. Moscou: Mir.
- LORILLU, O., WEBER, R. & HUREAU, J. 2002 Numerical and experimental analysis of two-dimensional separated flows over a flexible sail. *J. Fluid Mech.* **466**, 319–341.
- NIKLAS, K. J. 1999 A mechanical perspective on foliage leaf form and function. *New Phytol.* **143**, 19–31.
- RAYLEIGH, LORD 1945 *The Theory of Sound*, 2nd Edn, Vol. I. Dover.
- READ, J. & SANSON, G. D. 2003 Characterizing sclerophylly: the mechanical properties of a diverse range of leaf types. *New Phytol.* **160**, 81–99.
- SCHOUVEILER, L., ELOY, C. & LE GAL, P. 2005 Flow-induced vibrations of high mass ratio flexible filaments freely hanging in a flow. *Phys. Fluids* **17**, 047104.
- VOGEL, S. 1989 Drag and reconfiguration of broad leaves in high winds. *J. Expl Bot.* **40**, 941–948.

Morphogenèse et auto-organisation : tiges, plaques, films et gouttes

Arezki BOUDAUD

Résumé : Ce manuscrit est consacré à l'étude de divers aspects de la morphogenèse dans des liquides et des solides confinés – instabilités, singularités et phénomènes multi-échelles – en combinant expériences, simulations numériques et outils analytiques. Dans un premier temps, nous abordons le compactage et le flambage de tiges et de plaques et nous relierons le flambage à la croissance différentielle dans le vivant. Ensuite, nous considérons des films liquides sur un substrat solide et en particulier la dynamique d'une ligne de contact. Enfin, nous étudions deux formes d'auto-organisation : des gouttes rebondissant sur un liquide et la coalescence élastocapillaire d'une assemblée de tiges.

Morphogenesis and self-organisation : rods, plates, films and drops

Arezki BOUDAUD

Abstract : This manuscript is devoted to an investigation of various aspects of morphogenesis in confined liquids and solids – instabilities, singularities and multi-scale phenomena – combining experiments, numerics and theoretical tools. First, we focus on the packing and buckling of rods and plates ; we relate buckling to differential growth in living systems. Then we consider liquid films on a solid substrate and more particularly the dynamics of a contact line. Eventually, we investigate two types of self-organisation : drops bouncing on a liquid and the elastocapillary coalescence of a set of rods.